

Étude du transport thermique dans le candidat de liquide de spins Kitaev $\alpha - \text{RuCl}_3$

par

Étienne Lefrançois

Mémoire présenté au département de physique
en vue de l'obtention du grade de maître ès sciences (M.Sc.)

FACULTÉ des SCIENCES
UNIVERSITÉ de SHERBROOKE

Sherbrooke, Québec, Canada, 10 décembre 2019

Le 10 décembre 2019

le jury a accepté le mémoire de Monsieur Étienne Lefrançois dans sa version finale.

Membres du jury

Professeur Louis Taillefer
Directeur de recherche
Département de physique

Professeur René Côté
Membre interne
Département de physique

Professeure Eva Dupont-Ferrier
Présidente rapporteur
Département de physique

Cet ouvrage est dédié à ma famille.

“I think nature’s imagination is so much greater than man’s, she’s never going to let us relax”
Richard Feynman

Sommaire

Ce mémoire traite de mesures expérimentales de transport thermique dans un matériau isolant électrique : $\alpha - \text{RuCl}_3$. Cet isolant magnétique très bidimensionnel suscite beaucoup d'intérêt depuis plusieurs années dans la communauté des matériaux quantiques, car il possède toutes les propriétés cristallines et électroniques requises pour satisfaire un modèle théorique prédit et résolu par Alexei Kitaev en 2006. Ce modèle prédit l'émergence de fermions de Majorana, des excitations topologiques, qui seraient directement observables dans une mesure d'effet Hall thermique noté κ_{xy} .

Le chapitre 1 fait un bref survol des propriétés principales des matériaux magnétiquement désordonnés ainsi que du modèle de Kitaev qui décrit les liquides de spins quantiques. Le chapitre 2 se concentre sur les propriétés cristallines, électroniques et magnétiques de $\alpha - \text{RuCl}_3$ ainsi que sur les études de transport de chaleur réalisées à ce jour. Le chapitre 3 explique la procédure expérimentale qui a été employée dans ce travail quant à la préparation des échantillons, les mesures des conductivités thermiques longitudinale (κ_{xx}) et transverse (κ_{xy}) et les difficultés expérimentales rencontrées. Finalement, le chapitre 4 rapporte l'étude des conductivités thermiques longitudinale et transverse réalisée dans plusieurs échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ en étudiant leurs comportements en température et en champ magnétique.

L'étude du transport thermique portée dans le dernier chapitre sera l'objet d'un article scientifique qui sera rédigé durant l'automne 2019 et dont la soumission à la revue *Physical Review* est visée durant le mois de décembre 2019.

Remerciements

Les dix-huit mois durant lesquels j'étais un étudiant en maîtrise dans le groupe Taillefer ont été très enrichissants. La recherche dans ce groupe est stimulante et passionnante, et permet une expérience académique des plus stimulantes et marquée de plusieurs défis. Une maîtrise dans le groupe m'a permis de découvrir le monde exaltant qu'est celui de la recherche scientifique ainsi que l'esprit de collaboration.

Je tiens tout d'abord à te remercier, Louis, de m'avoir offert l'opportunité d'amorcer le monde de la recherche en me prenant sous ton aile. Toute cette histoire a débuté lorsque tu m'as offert l'opportunité de faire deux stages dans ton groupe lorsque j'étais un étudiant au baccalauréat en physique. Dès ces instants, j'ai eu «la piqure» pour le monde du transport dans les matériaux quantiques. Je dirai ceci au nom des gens qui constituent ton groupe : Merci de partager ta passion pour la recherche, ton esprit vif et critique ainsi que ton monumental bagage de connaissances avec nous tous.

Je tiens ensuite à remercier toutes les personnes avec qui j'ai travaillé, discuté et rigolé, je vous remercie Sven Badoux, Anaëlle Legros, Maude Lizaire, Bastien Loret, Amirreza Ataei, Steven Thériault, Patrick Bourgois-Hope, Clément Girod, Francis Laliberté, Marie-Eve Boulanger, Nicolas Doiron-Leyraud, Jordan Baglo, Adrien Gourgout, Simon Fortier et Gaël Grissonnanche. Vous avez toutes et tous été importants pour moi durant cette maîtrise, tant pour votre aide que pour votre amitié et camaraderie.

J'aimerais souligner ta contribution essentielle, Adrien, au bon déroulement de ma maîtrise. Je te remercie d'avoir pris du temps pour m'expliquer plusieurs concepts de la physique lorsque je te demandais ton aide, tu as fait preuve de pédagogie et de beaucoup de patience. J'ai d'ailleurs apprécié ces moments de rigolades pendant lesquels nous nous racontions toutes ces blagues moisieuses avec ce cher Clément Girod !

Je tiens à te remercier du fond du coeur, Gaël. Tu as été pour moi un mentor, un guide, un modèle durant ces dix-huit mois de maîtrise... et tu le demeureras ! Tu as fait preuve

de beaucoup de patience à mon égard et tu as fais de moi une meilleure personne et un meilleur chercheur en devenir. Je te remercie aussi pour tous ces moments de camaraderie pendant lesquels nous rigolions. Finalement, je tiens à ce que tu saches que tu es un grand chercheur et que tu m'inspires beaucoup.

Pour conclure, j'aimerais souligner l'importance que les membres de ma famille ont eu sur moi durant mon parcours académique. Maman, Papa, Phil, Gaby, tío Ariel, Abuela y Abuelo, Marco et Josianne merci infiniment pour votre affection et votre amour. Vous êtes si importants pour moi. Je tiens aussi à vous remercier, Nicole, Normand et Antony, d'être toujours aussi accueillants et présents pour moi. Un merci particulièrement spécial à toi, Roxanne, pour m'avoir soutenu depuis le baccalauréat dans les beaux moments autant que dans les moments plus difficiles. Sache que je suis chanceux et privilégié de pouvoir compter sur toi et d'être à tes côtés.

Table des matières

| | |
|--|------------|
| Sommaire | iii |
| Publications | 1 |
| Introduction | 1 |
| 1 Généralités et mise en contexte | 4 |
| 1.1 Introduction aux liquides de spins | 6 |
| 1.2 Modèle de Kitaev pour un LSQ | 9 |
| 1.2.1 Bref survol du modèle de Kitaev | 10 |
| 1.2.2 Spectres d'énergie des fermions de Majorana et états de bord | 14 |
| 1.2.3 Effet Hall thermique κ_{xy} dans un LSQ Kitaev | 18 |
| 2 $\alpha - \text{RuCl}_3$: un liquide de spin Kitaev ? | 20 |
| 2.1 Structure cristalline | 22 |
| 2.2 Structure magnétique et interactions dépendantes des liens | 24 |
| 2.3 État fondamental | 27 |
| 2.4 Diagramme de phase magnétique | 29 |
| 2.5 Fermions de Majorana dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 32 |
| 2.6 Motivations du projet de maîtrise | 35 |
| 2.7 État de l'art de la conductivité thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 35 |
| 2.7.1 Basses températures ($T < 1\text{K}$) | 35 |
| 2.7.2 Hautes températures ($T > 1\text{K}$) | 36 |
| 3 Méthodes expérimentales | 39 |
| 3.1 Principe de mesure | 40 |
| 3.1.1 Conductivité thermique longitudinale κ_{xx} | 40 |
| 3.1.2 Dépendance en température de κ_{xx} d'un isolant électrique | 41 |
| 3.1.3 Conductivité thermique transverse κ_{xy} | 43 |

| | | |
|----------|--|-----------|
| 3.1.4 | Effet Hall thermique d'un métal et d'un isolant | 45 |
| 3.2 | Techniques de mesure | 48 |
| 3.2.1 | Échantillons | 48 |
| 3.2.2 | Montage expérimental et thermométrie | 50 |
| 3.2.3 | Instrumentation | 56 |
| 3.2.4 | Difficultés expérimentales | 59 |
| 4 | Mesures de transport thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 64 |
| 4.1 | Conductivité thermique κ_{xx} | 64 |
| 4.2 | Conductivité thermique et champ magnétique dans le plan | 71 |
| 4.3 | Effet Hall thermique κ_{xy} | 76 |
| 4.4 | Effet Hall thermique et champ magnétique dans le plan | 84 |
| | Conclusion | 86 |
| A | Échantillons | 89 |
| A.1 | Échantillons mesurés et facteurs géométriques | 89 |
| A.2 | Configurations des contacts des échantillons | 91 |
| B | Figures supplémentaires du modèle de Kitaev [1, 2] | 92 |
| B.1 | Spectre d'énergie des fermions de Majorana, $H = 0$ | 92 |
| B.2 | Spectre d'énergie des fermions de Majorana, $H \neq 0$ | 93 |
| C | Figures supplémentaires de $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 95 |
| | Bibliographie | 97 |

Liste des tableaux

| | | |
|-----|--|----|
| 1.1 | Différents régimes en température du modèle de Kitaev et leur excitation émergente | 13 |
| 3.1 | Diffuseurs des phonons et leur dépendance en température | 42 |
| 3.2 | Liste des appareils de mesure pour réaliser l'effet Hall thermique en laboratoire | 58 |
| A.1 | Liste des échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et leurs dimensions pour la configuration 1 des contacts thermiques | 89 |
| A.2 | Liste des échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et leurs dimensions pour la configuration 2 des contacts thermiques | 90 |
| A.3 | Liste des échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et leurs dimensions pour la configuration 3 des contacts thermiques | 90 |

Table des figures

| | | |
|------|---|----|
| 1.1 | Schémas de l'antiferromagnétisme, le liquide de spins et le paramagnétisme | 5 |
| 1.2 | Maille triangulaire et interaction d'échange antiferromagnétique | 6 |
| 1.3 | Susceptibilité magnétique et frustration magnétique | 7 |
| 1.4 | Configuration de singulets sur un maille triangulaire | 8 |
| 1.5 | Fonction d'onde imagée d'un liquide de spins quantiques | 8 |
| 1.6 | Propagation d'un spinon sur une maille triangulaire | 9 |
| 1.7 | Réseau hexagonal avec interaction d'échange anisotrope | 9 |
| 1.8 | Frustration magnétique dépendante du lien et diagramme de phase du modèle théorique de Kitaev | 11 |
| 1.9 | Illustration du changement de représentation dans le modèle de Kitaev . . . | 12 |
| 1.10 | Illustration des différents régimes en énergie du modèle de Kitaev | 13 |
| 1.11 | Relation de dispersion en énergie des fermions de Majorana dans l'espace réciproque | 14 |
| 1.12 | Structure de bandes d'un système Kitaev dont les limites sont finies | 16 |
| 1.13 | Conduction de la chaleur par des états de bord de type électron et de type fermion de Majorana | 17 |
| 1.14 | Simulations <i>Monte Carlo</i> quantiques de l'effet Hall thermique dans le modèle de Kitaev | 18 |
| 2.1 | Diagramme de phase des corrélations électroniques U/t en fonction de l'interaction spin-orbite λ/t des matériaux isolants électriques | 21 |
| 2.2 | Structure cristalline de $\alpha - \text{RuCl}_3$ sous différents angles | 22 |
| 2.3 | Graphiques de la chaleur spécifique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et <i>fits</i> des modèles de Debye 2D et 3D | 23 |
| 2.4 | Champ cristallin d'un octaèdre de RuCl_6 et orbitales d | 24 |
| 2.5 | Structure électronique d'un système isolant de Mott induit | 25 |
| 2.6 | Liaisons 90° et 180° entre deux octaèdres | 26 |
| 2.7 | Non-conservation de l'indice orbital ℓ dans une maille hexagonale | 27 |

| | | |
|------|---|----|
| 2.8 | Ordre antiferromagnétique <i>zigzag</i> et champ magnétique dans le plan <i>ab</i> de la maille hexagonale | 28 |
| 2.9 | Graphiques de l'aimantation et de la chaleur spécifique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 28 |
| 2.10 | Variation en champ magnétique de la susceptibilité magnétique en fonction de la température et dôme antiferromagnétique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 29 |
| 2.11 | Schéma simplifié du diagramme de phase de $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 30 |
| 2.12 | Dépendance en champ de la diffusion inélastique de neutron dans chaque région du diagramme de phase | 31 |
| 2.13 | Effet Hall thermique κ_{xy}/T en fonction de H_{\parallel} : observation de la quantification sous forme de plateau | 32 |
| 2.14 | Effet Hall thermique κ_{xy}^{2D}/T en fonction de T : comparaison entre expérience et théorie | 34 |
| 2.15 | Conductivité thermique κ_{xx}/T en fonction de T entre 80mK et 700mK (basses températures) : dépendance en champ magnétique H_{\parallel} entre 0T et 9T | 36 |
| 2.16 | Conductivité thermique κ_{xx} en fonction de T où le champ magnétique est hors-plan | 37 |
| 2.17 | Conductivités thermiques κ_{ab} et κ_c en fonction de T où le champ magnétique est dans le plan | 38 |
| 3.1 | Schéma d'une mesure de conductivité thermique | 40 |
| 3.2 | Dépendance en température typique de κ_{xx} d'un isolant et correspondance avec celle du diamant | 43 |
| 3.3 | Schéma d'une mesure d'effet Hall thermique | 44 |
| 3.4 | Effet Hall thermique κ_{xy}/T et conductivité électrique de Hall $L_0\sigma_{xy}$ montrant la loi de Wiedemann-Franz dans le cuprate YBCO $p = 0.11$ à 27T | 46 |
| 3.5 | Effet Hall thermique κ_{xy}/T en fonction de T de l'isolant magnétique $\text{In}_2\text{Mn}_2\text{O}_7$ et du cuprate LSCO $p = 0.06$ | 47 |
| 3.6 | Schéma de la technique de croissance par transport chimique en phase vapeur de monocristaux | 48 |
| 3.7 | Étapes de préparation d'échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ typiques | 49 |
| 3.8 | Montage expérimental d'une mesure d'effet Hall thermique et composantes de mesure | 50 |
| 3.9 | Correspondance résistance-température des <i>Cernox</i> | 52 |
| 3.10 | Schématization de l'effet Seebeck dans un métal | 53 |
| 3.11 | Thermocouple différentiel de type E (chromel et constantan) | 54 |
| 3.12 | Sonde expérimentale où sont installés les échantillons et <i>rack</i> contenant les appareils nécessaires à une mesure d'effet Hall thermique | 57 |

| | | |
|------|---|----|
| 3.13 | <i>Variable Temperature Insert</i> (VTI) et cryostat d'Helium liquide contenant l'aimant supraconducteur | 59 |
| 3.14 | Stabilité des voltages en fonction du temps de la température principale T_0 , d'un thermomètre V_{Cernox} et d'un thermocouple différentiel V_y à 2.5K | 60 |
| 3.15 | Exfoliation d'un échantillon de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et échantillon endommagé par le champ magnétique | 61 |
| 3.16 | Effet Hall thermique κ_{xy} en fonction de la température pour différentes séquences de mesure | 62 |
| 3.17 | Dépendance en champ magnétique du <i>background</i> du gradient thermique transverse ΔT_y | 63 |
| 4.1 | Conductivité thermique κ_{xx} en fonction de T dans l'échantillon Z0326z . . . | 65 |
| 4.2 | Conductivité thermique κ_{xx} en fonction de T dans les échantillons 1804A, 1804D et 1804C | 66 |
| 4.3 | Conductivité thermique κ_{xx} en fonction de T dans $\alpha - \text{RuCl}_3$: comparaison entre quatre études | 67 |
| 4.4 | Aimantation $M/M(18\text{K})$ et conductivité thermique κ_{xx} dans $\alpha - \text{RuCl}_3$: comparaison entre deux études | 68 |
| 4.5 | Conductivité thermique κ_{xx} en fonction de T dans $\alpha - \text{RuCl}_3$: comparaison entre échantillon coupé et exfolié et échantillon <i>as grown</i> | 69 |
| 4.6 | Empilements de types ABC et ABAB et chaleur spécifique C_p en fonction de T : observation d'une anomalie à 14K | 70 |
| 4.7 | Schéma d'un échantillon soumis à un champ magnétique en angle | 71 |
| 4.8 | Dépendance en champ magnétique $H_{ }$ de la conductivité thermique κ_{xx}/T en fonction de T dans l'échantillon 1809A et diagramme de phase expérimental | 72 |
| 4.9 | Schémas de la dépendance en température du paramètre d'ordre d'une transition de phase du second ordre et d'un <i>crossover</i> | 73 |
| 4.10 | Conductivité thermique κ_{xx}/T en fonction de la température T et du champ magnétique $H_{ }$: comparaison entre trois différentes études | 74 |
| 4.11 | Conductivité thermique κ_{xx}/T en fonction de T pour $H_{ } = 4.5\text{T}$, $H_{ } = 7\text{T}$ et $H_{ } = 8.5\text{T}$ | 75 |
| 4.12 | Champ magnétique en angle et observation de la quantification de l'effet Hall thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ | 77 |
| 4.13 | Effet Hall thermique κ_{xy} en fonction de T dans les échantillons 1804C, 1804D et 1804E | 78 |
| 4.14 | COnductivité thermique κ_{xx}/T et effet Hall thermique κ_{xy}/T à 15T en fonction de T dans l'échantillon 1804C | 79 |

| | | |
|------|--|----|
| 4.15 | Dépendance en champ magnétique de la conductivité thermique κ_{xx} et de l'effet Hall thermique κ_{xy}/H en fonction de T dans l'échantillon 1804C . . . | 80 |
| 4.16 | Effet Hall thermique κ_{xy}/T en fonction de T à 15T : comparaison entre trois études | 81 |
| 4.17 | Effet Hall thermique κ_{xy}^{2D}/T en fonction de T : comparaison entre expérience et théorie | 82 |
| 4.18 | Dépendance en champ magnétique H_{\parallel} de la conductivité thermique κ_{xx}/T et de l'effet Hall thermique κ_{xy}/T en fonction de T dans l'échantillon 1901A . . . | 84 |
| 4.19 | Susceptibilité magnétique AC χ_{AC} en fonction de H_{\parallel} dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ selon deux directions de haute symétrie | 85 |
| A.1 | Configuration 1 des contacts thermiques sur un échantillon | 91 |
| A.2 | Configuration 2 des contacts thermiques sur un échantillon | 91 |
| A.3 | Configuration 3 des contacts thermiques sur un échantillon | 91 |
| B.1 | Spectre en énergie non gappé des fermions de Majorana dans le modèle de Kitaev ($H = 0$) | 93 |
| B.2 | Spectre en énergie gappé des fermions de Majorana dans le modèle de Kitaev ($H \neq 0$) | 94 |
| C.1 | $\alpha - \text{RuCl}_3$, échantillon 1809A : κ_{xx}/T en fonction de T pour différentes valeurs de H_{\parallel} | 96 |

Publications

Titre : *Giant thermal Hall conductivity in the pseudogap phase of cuprate superconductors*

Auteurs : G. Grissonnanche, A. Legros, S. Badoux, E. Lefrançois, V. Zatzko, M. Lizaire, F. Laliberté, A. Gourgout, J.-S. Zhou, S. Pyon, T. Takayama, H. Takagi, S. Ono, N. Doiron-Leyraud, L. Taillefer

Journal : *Nature* **571**, 376-380 (2019)

Titre : *Thermal conductivity of quantum spin liquid candidate $\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$: No evidence of mobile gapless excitations*

Auteurs : P. Bourgeois-Hope, F. Laliberté, E. Lefrançois, G. Grissonnanche, S. René de Cotret, R. Gordon, S. Kitou, H. Sawa, H. Cui, R. Kato, L. Taillefer, N. Doiron-Leyraud

Journal : *Physical Review X* **9**, 041051 (2019)

Introduction

Les matériaux quantiques tels que les liquides de spins quantiques suscitent beaucoup d'engouement en physique de la matière condensée depuis les années 1970 après que Philip W. Anderson a proposé pour la première fois en 1973 la fonction d'onde de l'état fondamental d'un système de spins alignés antiparallèlement [3]. Cet état fondamental décrit un système magnétiquement désordonné et des quasiparticules exotiques telles que des spinons sont prédites par différents modèles.

C'est lorsqu'Alexei Kitaev propose en 2006, un modèle d'un liquide de spins quantiques d'un système de spins $1/2$ sur réseau bidimensionnel hexagonal que la recherche s'intensifie par rapport à la découverte de ces types de matériaux [1]. Ce modèle prédit des fermions de Majorana en termes d'états de bords topologiques à basse température, de façon analogue aux états de bords observés dans l'effet Hall quantique découvert expérimentalement en 1980. Pour pouvoir observer ces fermions de Majorana, une propriété de transport thermique doit être exploitée : l'effet Hall thermique.

Certains matériaux comme les pyrochlores tel que $\text{Ce}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$, les matériaux kagomé tel que herbertsmithite ($\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$), les organiques tel que *dmit* ($\text{EtMe}_3\text{Sb}[\text{Pd}(\text{dmit})_2]_2$) présentent des propriétés inhabituelles par rapport à des métaux et des isolants conventionnels et montrent des signatures typiques des liquides de spins quantiques dans plusieurs mesures expérimentales.

$\alpha - \text{RuCl}_3$ est connu depuis longtemps et il a d'abord été identifié comme étant un semiconducteur [4]. Cependant, depuis 2014, il est proposé comme étant un des candidats les plus prometteurs pour la réalisation du modèle de Kitaev. En 2018, une étude de Kasahara *et al.* [5] est parue dans la revue *Nature* afin de révéler une observation directe des fermions de Majorana dans l'effet Hall thermique. Depuis cette parution, aucun autre groupe de recherche dans le monde a réussi à reproduire ce résultat. Ce travail de maîtrise est principalement motivé par l'étude spectaculaire de Kasahara *et al.* sur $\alpha - \text{RuCl}_3$. Bien que la quantification de la conductivité thermique de Hall ait été observée par ce dernier

groupe de recherche japonais, il est évident, après ce projet de maîtrise, que le chemin qui pourrait mener à l'observation de ces fameux fermions de Majorana n'est pas si simple à emprunter et ce dernier comporte plusieurs obstacles et difficultés. Néanmoins, ces 18 mois de travail ont mené à une compréhension plus claire des phénomènes associés au transport de chaleur dans $\alpha - \text{RuCl}_3$.

Chapitre 1

Généralités et mise en contexte

Dans les années 1920, une expérience bien connue, l'expérience de Stern-Gerlach, a permis de mettre en évidence le fait qu'un électron, en plus d'être caractérisé par sa masse et sa charge, peut l'être aussi par un moment angulaire magnétique appelé spin. C'est cette propriété intrinsèque et microscopique de la matière (ici des électrons) qui confère à certaines classes de matériaux des ordres magnétiques tels que le ferromagnétisme (FM) et l'antiferromagnétisme (AFM). Cette propriété fondamentale des particules élémentaires a permis, au courant du XXe siècle, le développement d'une description microscopique des matériaux magnétiques. Les ordres magnétiques tels que le ferromagnétisme et l'antiferromagnétisme sont expliqués par le fait que les spins des électrons peuvent être parallèles ou antiparallèles les uns par rapport aux autres. Ceux-ci sont soumis à ce qu'on appelle une interaction d'échange et selon cette interaction, le système de spins engendre un ferroaimant ou un antiferroaimant. Depuis maintenant plus de trente ans, une classe de matériaux qui, même en présence d'interactions magnétiques, ne s'ordonnent pas à la température prédite par la théorie. Ces matériaux sont dits «liquides de spins» et suscitent un intérêt grandissant dans la communauté de la matière condensée, notamment par les propriétés topologiques comme des états de bords protégés du bruit environnant et des propriétés quantiques telles que l'intrication de spins. La recherche de l'existence des liquides de spins est aujourd'hui un vecteur important de la recherche en physique de la matière condensée.

Souvent, un système composé de spins qui interagissent magnétiquement, via l'interaction d'échange, engendre un ordre magnétique à longue portée à suffisamment basse température. Cependant, dans un système désordonné, aucun ordre magnétique ne parvient à s'établir malgré la présence des interactions magnétiques. L'idée d'un système de spins dont les interactions magnétiques engendrent un état désordonné à $T = 0$ a été proposée en 1973 par le physicien américain Philip W. Anderson [3]. Ce système appelé liquide de

spins fait référence à l'état désordonné des spins qui composent un système, tout comme les molécules d'eau à l'état liquide qui ne s'organisent pas de façon périodique et rangée comme l'eau à l'état de glace.

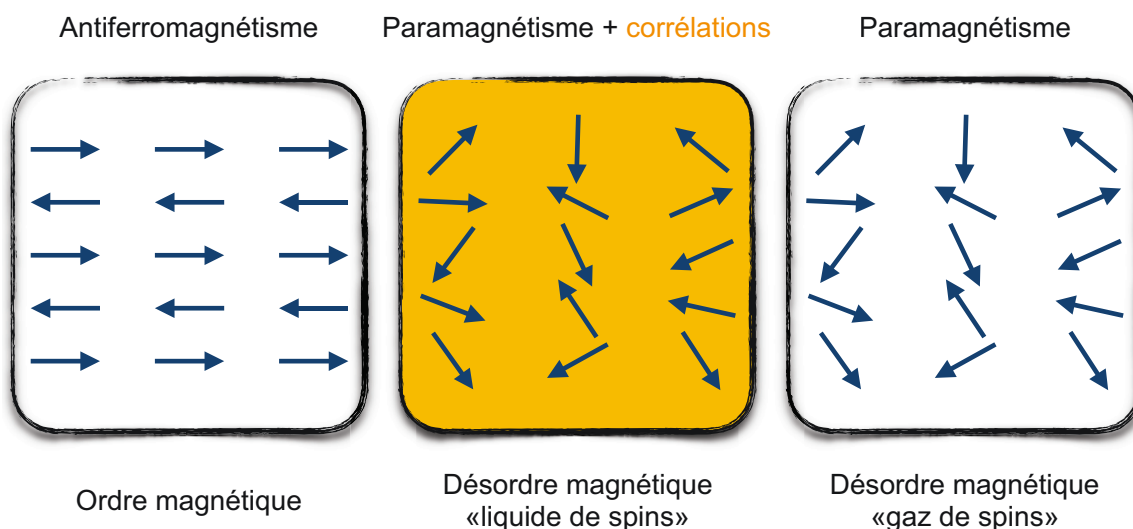


FIGURE 1.1 Schémas illustrant différents états magnétiques dans un système isolant électrique composé de spins. À gauche, un état antiferromagnétique. Au centre, un état paramagnétique en présence de corrélations entre les spins; cet état simpliste peut être imaginé comme un système décrivant un «liquide de spins». À droite, un état paramagnétique classique («gaz de spins»).

Ce mémoire traite du matériau $\alpha - \text{RuCl}_3$ qui est décrit par des interactions entre spins $1/2$. De façon simpliste, la figure 1.1 illustre trois situations différentes de systèmes de spins. Le dessin de gauche illustre un système antiferromagnétique conventionnel tandis que celui de droite illustre un système paramagnétique où les spins interagissent faiblement entre eux (gaz de spins). Le dessin du centre par contre illustre un état paramagnétique où les corrélations entre spins jouent un rôle important dans le système; on parle ici d'un liquide de spins.

1.1 Introduction aux liquides de spins

L'état liquide de spins est un état de la matière dans lequel les spins sont fortement corrélés et dont le désordre magnétique peut persister à basse température. Le désordre peut être engendré par la frustration magnétique. Il existe différentes origines de frustration, la première que nous considérerons pour illustrer notre propos est la frustration magnétique géométrique.

Celle-ci peut être imaginée comme étant une configuration de trois spins soumis à un couplage antiferromagnétique sur réseau triangulaire comme illustré à la figure 1.2b. Un des spins ne parvient pas à se placer de la façon qui minimiserait l'énergie, donc il fluctue entre les deux configurations possibles. La figure 1.2a illustre un réseau triangulaire sur lequel reposent des spins sur chaque site. Cette situation met en évidence la frustration magnétique qui tient son origine de la géométrie du réseau. Contrairement à quatre spins sur un réseau carré, trois spins sur un réseau triangulaire ne peuvent minimiser l'énergie; ils engendrent donc la frustration géométrique.

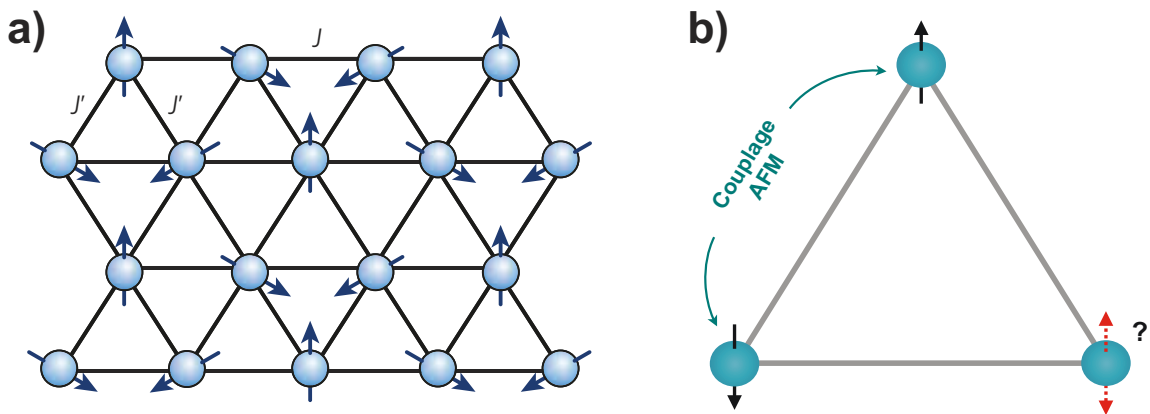


FIGURE 1.2 (a) Spins magnétiquement frustrés sur un réseau triangulaire (figure tirée de [6]). (b) Frustration géométrique de spins sur réseau triangulaire. Le troisième spin ne peut s'aligner de façon à minimiser l'énergie et fluctue entre les deux configurations permises spin up $|\uparrow\rangle$ et spin down $|\downarrow\rangle$.

D'après la théorie de Curie-Weiss qui décrit un système AFM, l'inverse de la susceptibilité magnétique suit une droite pour des températures supérieures à la température de Néel (état paramagnétique) définie comme T_N correspondant à la température où l'ordre magnétique s'installe. Sous T_N , $1/\chi$ dévie de la linéarité, mais il est possible d'extrapoler la linéarité de la courbe jusqu'à ce que la courbe croise l'axe des abscisses comme le montrent les figures 1.3. Cette température correspond à la température de Curie-Weiss définie comme θ_{CW} .

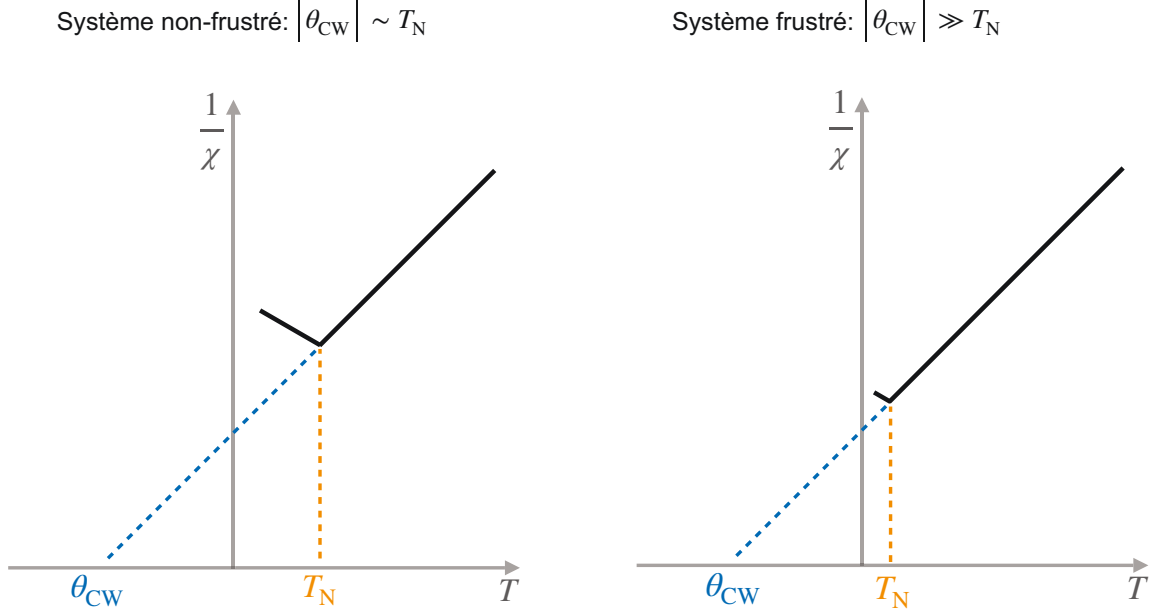


FIGURE 1.3 Schéma de l'inverse de la susceptibilité magnétique en fonction de la température qui permet de connaître l'état de frustration d'un système antiferromagnétique. À gauche, le système est non-frustré puisque $|\theta_{CW}| \simeq T_N$. À droite, le système est frustré puisque $|\theta_{CW}| \gg T_N$ (figure refaite à partir de [7]).

D'après la théorie de Curie-Weiss, dans un système AFM non-frustré, les températures $|\theta_{CW}|$ et T_N sont les mêmes (voir la figure 1.3 de gauche), mais en présence de frustration magnétique, la température de Néel est plus faible que $|\theta_{CW}|$ (voir la figure 1.3 de droite) dû à la cause de l'augmentation des corrélations entre spins.

Le paramètre de frustration noté f est un paramètre empirique (équation 1.1) qui renseigne sur l'état de frustration de spin d'un système. Si $f > 1$, le matériau est magnétiquement frustré [7] tandis que si $f < 1$, le système ne l'est pas.

$$f = \frac{|\theta_{CW}|}{T_N} \quad (1.1)$$

Considérons à nouveau le réseau triangulaire. Les spins reposant sur chaque sommet sont soumis à des interactions magnétiques et permettent d'imaginer une situation de liquide de spins possible. Sur la figure 1.4, deux spins voisins sont intriqués de sorte qu'ils forment un état quantique nommé singulet. Cette situation permet de mettre en évidence un état liquide de spins où, en réalité, chaque singulet fluctue en fonction du temps. Chaque configuration différente de singulets possède la même énergie et donc la fonction d'onde $|\psi\rangle$

(l'état) qui pourrait décrire qualitativement un liquide de spins peut être imaginée comme un état de la matière dégénéré illustré à la figure 1.5.

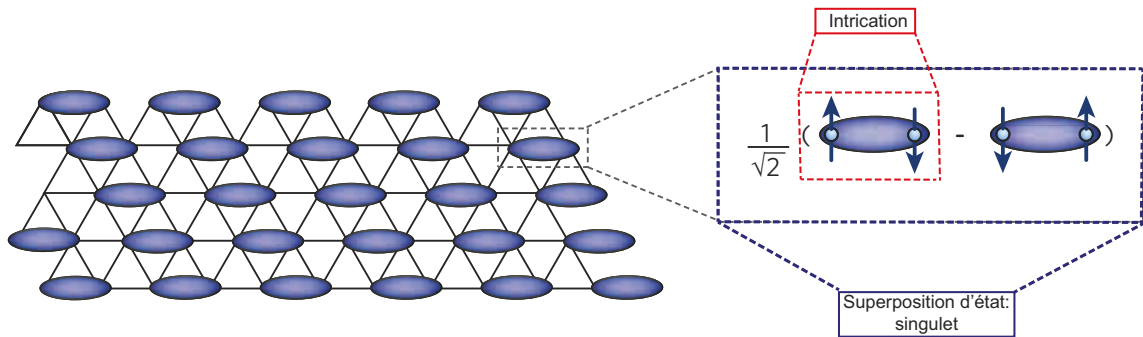


FIGURE 1.4 Configuration particulière de doublets de spins appelés singlets (ovales bleus). Deux spins voisins de la maille triangulaire sont intriqués et forme une superposition d'état (figure adaptée de [6]).

Le cas particulier de la figure 1.4 ne représente donc qu'une configuration particulière de singlets sur la maille triangulaire parmi toutes celles possibles.

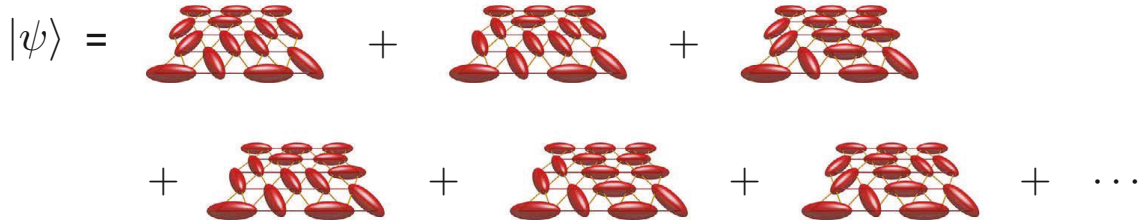


FIGURE 1.5 Illustration qualitative de la fonction d'onde $|\psi\rangle$ d'un état liquide de spins composée de toutes les configurations possibles de doublets de spins sur la maille cristalline triangulaire (figure adaptée de [8]).

Cette idée qu'une fonction d'onde s'apparentant à celle de la figure 1.5 a été proposée par Anderson en 1987 pour le cuprate La_2CuO_4 et il a postulé, à cette époque, que cet état pourrait décrire l'état fondamental d'un liquide de spins quantique (LSQ) qui est un liquide de spins (LS) à $T = 0$ où le désordre persisterait jusqu'à température nulle. Cette idée est très importante puisqu'elle a permis de prédire l'émergence d'un type de quasi-particule fondamentale du LSQ : le spinon. Un spinon est une quasi particule fermionique de spin $1/2$ électriquement neutre.

Un spinon est issu de deux spins non-appariés. Étant donné que les singlets fluctuent en fonction du temps, c'est-à-dire que chaque spin peut être intriqué à un spin différent en

fonction du temps, deux spins qui sont non-appariés peuvent se mouvoir dans la maille comme l'illustre la figure 1.6.

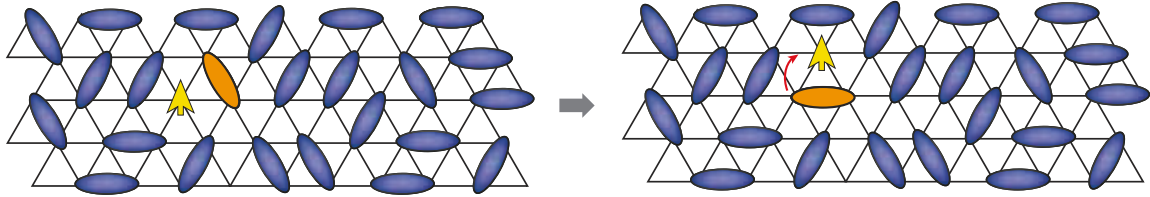


FIGURE 1.6 Illustration d'un spinon (flèche jaune) qui correspond à un des deux spins non-appariés qui peut circuler dans la maille puisque les singulets fluctuent en fonction du temps (figure adaptée de [6]).

1.2 Modèle de Kitaev pour un LSQ

En 2006 au *California Institute of Technology* (Caltech), le physicien russe Alexei Kitaev a proposé la résolution d'un modèle antiferromagnétique de spins $1/2$ en interaction sur un réseau hexagonal [1]. Ce modèle tient sa particularité du fait qu'il se résout exactement. Le modèle décrit des interactions d'échange aux premiers voisins de spins $1/2$ sur un réseau hexagonal similaire au modèle d'Heisenberg. Cependant, ce modèle prend en considération des interactions d'échange anisotropes, c'est-à-dire, dépendantes du lien entre des spins adjacents.

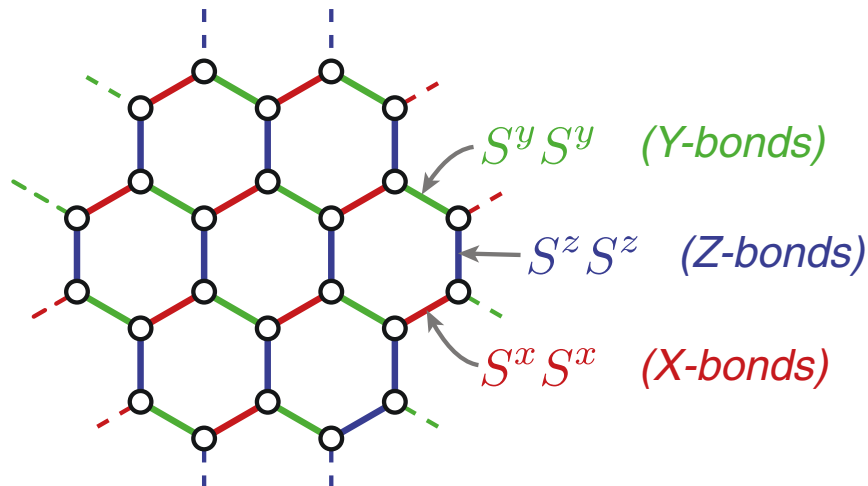


FIGURE 1.7 Réseau hexagonal où des spins $1/2$ sont situés sur chaque site décrit par un cercle blanc dont l'interaction d'échange entre deux spins voisins $S^\gamma S^\gamma$ ($\gamma = x, y, z$) dépend du lien dans la maille (figure tirée de [9]).

À la section 1.1, le concept de frustration géométrique a permis d'expliquer l'origine de la frustration magnétique. Dans le cas particulier du modèle de Kitaev, la frustration magnétique tient son origine de l'anisotropie des interactions. Habituellement, un système de spins 1/2 sur réseau est un système AFM si l'interaction est la même entre tous les spins. Cependant, dans son modèle, Kitaev a introduit cette anisotropie qui peut être observée à la figure 1.7 où un spin 1/2 repose sur chaque cercle et où les liens de différentes couleurs correspondent à une interaction différente.

1.2.1 Bref survol du modèle de Kitaev

Dans cette sous-section, nous aborderons les principales idées du modèle de Kitaev qui mèneront à la description microscopique d'un LSQ dit LSQ Kitaev. Le hamiltonien que Kitaev propose dans ses travaux est le suivant :

$$\mathcal{H}_K = - \sum_{\langle i,j \rangle} \left(J_K^x S_i^x S_j^x + J_K^y S_i^y S_j^y + J_K^z S_i^z S_j^z \right) \quad (1.2)$$

où la somme se fait sur les premiers voisins i et j , c'est-à-dire $\langle i, j \rangle$, les J_K^γ ($\gamma = x, y, z$) sont les termes d'interaction de Kitaev et les $S_{\gamma,i}$ sont les composantes du vecteur de spin S_i . Comme mentionné précédemment, les spins soumis aux interactions J_K^γ engendrent une frustration issue de l'anisotropie des liens. La figure 1.8a illustre bien la frustration magnétique non-géométrique, mais plutôt issue de l'anisotropie de l'interaction. Les spins soumis aux interactions J_K^γ ne peuvent simultanément minimiser l'énergie, puisque selon la grandeur de J_K^γ , les spins s'aligneraient de façon AFM préférentiellement selon la direction γ . Bien que les liens soient bidimensionnels, l'interaction quant à elle est tridimensionnelle.

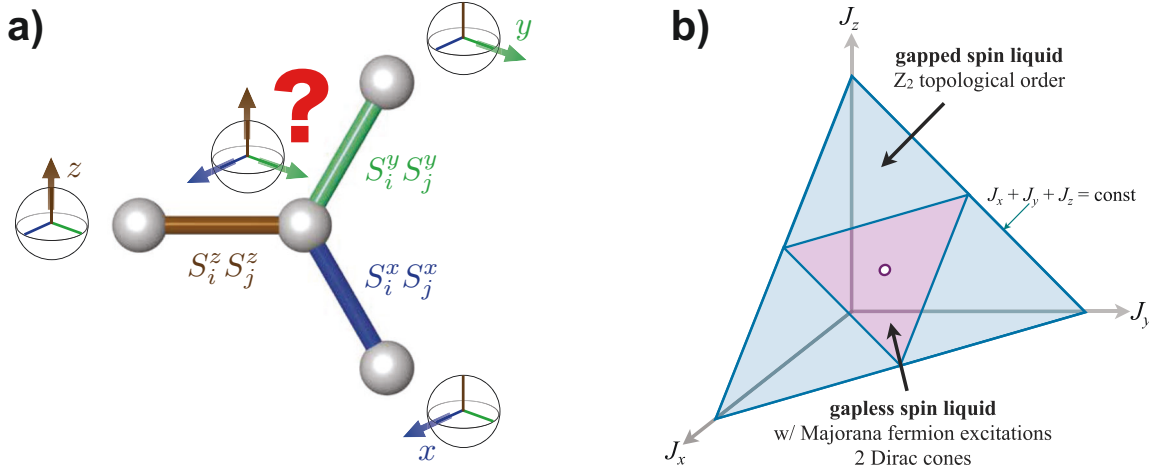


FIGURE 1.8 (a) Schéma des interactions dépendantes du lien du modèle de Kitaev. Les spins soumis à ces liens directionnels ne peuvent pas simultanément minimiser tous les J_K^γ . Les liens sont bidimensionnels tandis que l'interaction (représentée par les sphères) est tridimensionnelle (figure tirée de [10]). (b) Diagramme de phase du modèle de Kitaev en terme des interactions où deux phases sont possibles ; une phase gappée (lorsqu'un des J_K^γ domine selon un des liens) (région bleue) et non gappée, de type fermions de Dirac (région mauve) (figure tirée de [11]). La condition $J_x + J_y + J_z = C$ (C étant une constante) émerge de la diagonalisation du hamiltonien de Kitaev pour un système en absence de champ magnétique externe ; les termes d'échange $|J_x|, |J_y|, |J_z|$ doivent respecter les inégalités du triangle $|J_x| \leq |J_y| + |J_z|$, $|J_y| \leq |J_x| + |J_z|$ et $|J_z| \leq |J_x| + |J_y|$. Note : ici, les J_γ correspondent aux J_K^γ .

Sur la figure 1.8b, le diagramme de phase en termes d'interactions présente deux régions distinctes dont seule la région en mauve nous intéresse dans ce mémoire. Il s'agit d'une phase qualifiée de métal de Majorana non-gappée dans la littérature qui tient son appellation de la nature des excitations fondamentales inhérentes à cette région. Dans ce mémoire, nous serons intéressés par le cas où tous les J_K^γ seront de même amplitude, donc le centre du triangle. Nous aborderons cette question plus tard.

Maintenant que les idées de base qui définissent le modèle de Kitaev sont bien établies, concentrons-nous sur les concepts clés de la résolution du modèle que Kitaev a proposé dans son travail. La résolution exacte de son modèle repose sur un changement de représentation. En effet, Kitaev a exprimé les spins S_i^γ par des fermions de Majorana c_i . Les fermions de Majorana ont la particularité d'être leur propre antiparticule, c'est-à-dire :

$$c^\dagger = c \quad (1.3)$$

où c représente mathématiquement un fermion de Majorana. En passant les détails mathématiques, le hamiltonien qui décrit le système de spins en interaction devient un hamiltonien quadratique fermionique décrits par la variable c . Cette idée de rendre l'équation 1.2 quadratique par le changement de représentation provient du fait que le hamiltonien \mathcal{H}_K peut être diagonalisable comme s'il s'agissait d'un système de particules qui n'interagissent pas entre elles; le système est donc plus facile à résoudre. L'équation 1.2 devient donc

$$\mathcal{H}_K = \frac{i}{4} \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{A}_{ij} c_i c_j \sim \mathcal{O}(c^2) \quad (1.4)$$

où le terme $\hat{A}_{ij} = 2J_K \hat{u}_{ij}$ (les termes \hat{u}_{ij} sont définis comme les opérateurs de lien entre deux sites) est une matrice qui doit être diagonalisée ($J_K^\gamma = J_K$, puisque la zone considérée est la région en mauve à la figure 1.8b). Le hamiltonien à l'équation 1.4 est beaucoup plus facile à résoudre que le hamiltonien initial de l'équation 1.2 parce qu'il décrit des fermions de Majorana itinérants (libres).

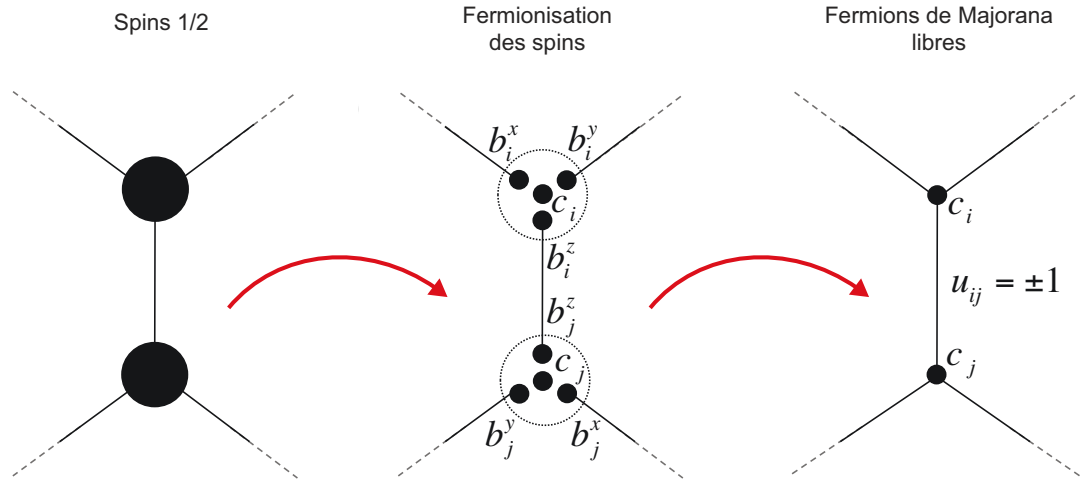


FIGURE 1.9 Schéma qui illustre le changement de représentation en passant par une fermionisation des degrés de liberté des spins 1/2. Initialement (gauche), les spins 1/2 reposent sur chaque site et finalement (droite), les fermions de Majorana libres se meuvent dans la maille hexagonale (figure adaptée de [2]).

Sur la figure 1.9, la résolution du modèle de Kitaev est graphiquement schématisée. À gauche, deux spins 1/2 résident sur deux sites distincts. Au centre, la fermionisation des spins (changement de représentation des spins vers les fermions de Majorana) permet de représenter un spin par quatre fermions de Majorana. À droite, le modèle initial peut être

perçu comme des fermions de Majorana libres dans un environnement diffusif.

Ultimement, la résolution du modèle de Kitaev met en évidence deux types de quasi-particules dans l'état fondamental : des fermions de Majorana et des flux Z_2 ¹. De façon à ce qu'il soit intuitif de se familiariser avec les excitations ainsi que leur dynamique dans le modèle, penchons-nous sur la figure 1.10.

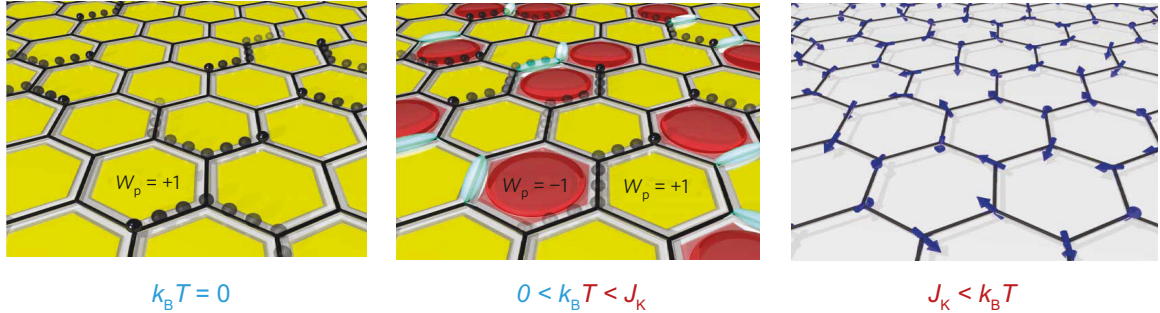


FIGURE 1.10 Illustration qualitative de l'émergence des fermions de Majorana selon les différents régimes de température. (Gauche) dans l'état fondamental, les fermions de Majorana (billes noires) circulent dans un environnement non-diffusif (sans flux Z_2). (Centre) Lorsque la température augmente, les flux Z_2 (hexagones rouges) s'activent thermiquement et prolifèrent, diffusant ainsi les fermions de Majorana. (Droite) Lorsque la température excède l'énergie caractéristique du système, celui-ci est un para-aimant ; les spins ne sont pas fractionnés en fermions de Majorana (figure adaptée de [12]).

En considérant une échelle de température, la dynamique du modèle de Kitaev peut être expliquée en termes des excitations fondamentales fermioniques :

| État fondamental ($k_B T = 0$) | État intermédiaire ($0 < k_B T < J_K$) | État paramagnétique ($J_K < k_B T$) |
|--|---|--|
| Les fermions de Majorana se meuvent dans un environnement sans flux Z_2 (environnement non-diffusif) | Les flux Z_2 diffusent les fermions de Majorana | Les spins 1/2 sont désordonnés |

TABLE 1.1 Tableau qui résume brièvement l'émergence des fermions de Majorana dans le modèle de Kitaev à la figure 1.10 selon des différents régimes de température.

1. Les flux Z_2 tiennent leur appellation de la littérature et correspondent en quelque sorte à un flux magnétique à travers un hexagone de la maille qui peut pointer vers les directions \hat{z} ou $-\hat{z}$ (\hat{z} étant le vecteur normal à un hexagone). Ils agissent comme diffuseurs des fermions de Majorana libres.

La figure 1.10 permet donc d'expliquer les différents régimes en terme de l'énergie caractéristique du système J_K de façon plutôt simple et en s'affranchissant du développement mathématique complexe.

1.2.2 Spectres d'énergie des fermions de Majorana et états de bord

Dans la sous-section 1.2.1, nous nous sommes penchés sur la façon que Kitaev a employée afin de pouvoir résoudre son modèle, ainsi que sur les deux types d'excitations fondamentales de son modèle de LSQ sur réseau hexagonal : les fermions de Majorana et les flux Z_2 . Maintenant, ces deux quasi-particules présentent des propriétés exotiques sans et sous champ magnétique externe.

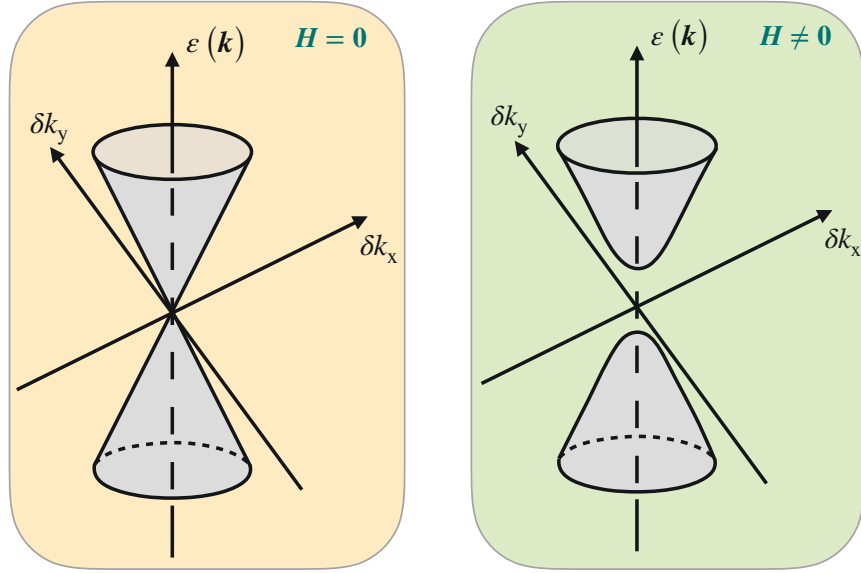


FIGURE 1.11 Spectres d'énergie des fermions de Majorana dans le modèle de Kitaev (a) sans champ magnétique externe (b) sous champ magnétique externe (figures inspirées de [1]).

Le spectre en énergie des fermions de Majorana dans l'espace réciproque correspond à des cônes de Dirac. Ces fermions agissent comme des fermions non-gappés sans masse pour de faibles valeurs de k . Le spectre est illustré sur la figure 1.11a et la relation de dispersion correspond à :

$$\varepsilon(k) \sim \pm J_K |k| \quad (1.5)$$

où J_K est l'interaction d'échange de Kitaev introduite à la sous-section précédente. Lorsqu'une perturbation externe, un champ magnétique, est appliquée au système initial, un gap s'ouvre dans le spectre d'énergie des fermions de Majorana. Ce gap est illustré sur la figure 1.11b et la dispersion en énergie vaut maintenant :

$$\varepsilon(\mathbf{k}) \sim \pm \sqrt{3J_K^2 |\mathbf{k}|^2 + \Delta_{MF}^2} \quad (1.6)$$

où Δ_{MF} correspond au gap des fermions de Majorana qui correspond à :

$$\Delta_{MF} = 6\sqrt{3} \frac{H^3}{J_K^2} \quad (1.7)$$

qui suit donc une loi cubique en champ magnétique. Le spectre des flux Z_2 , quant à lui, ne varie pas en champ magnétique et vaut, selon la théorie, $\Delta_{flux} = 0.065J_K$, qui représente *grosso modo* la température au-dessus de laquelle les flux apparaissent.

Pour la suite, l'objectif est de se familiariser avec la façon dont on peut détecter ces fermions de Majorana. En effet, le modèle de Kitaev prédit des fermions de Majorana libres dans un réseau hexagonal bidimensionnel, détectables sous la forme d'états de bord chiraux.

Lorsque le système décrit par le modèle de Kitaev est soumis à un champ magnétique H , la symétrie par inversion du temps est brisée et un gap s'ouvre dans la dispersion des fermions de Majorana ; le volume du matériau devient un isolant topologique par rapport à ces particules. Il reste alors des états de bords conducteurs du fait de la topologie du gap dans le volume. Considérons donc les schémas de la figure 1.12 où le système possède des dimensions finies. Il est important de préciser à ce point, qu'à chaque fois qu'il est mentionné "isolant", c'est par rapport aux déplacements des fermions de Majorana, et non des électrons dans le système. Tous les matériaux candidats pour le modèle de Kitaev sont des isolants électroniques de Mott.

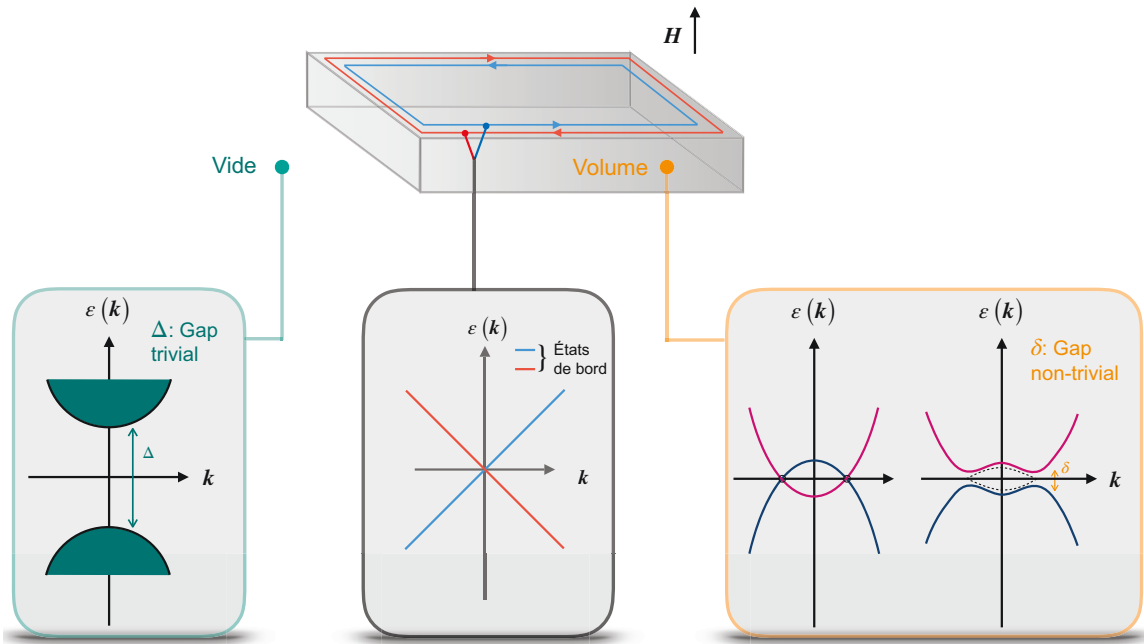


FIGURE 1.12 Schéma de la structure de bandes du matériau aux dimensions finies qui vise à illustrer l'origine des états de bord. Afin que la topologie des gaps trivial (a) et non-trivial (c) change de façon continue, des états de bord conducteurs (b) doivent être présents à l'interface des gaps du vide et du volume.

Sur la figure 1.12, le système est dans le vide, un environnement isolant dont le gap est trivial (figure 1.12a). Lorsqu'un champ magnétique est appliqué sur le système, les excitations du volume (fermions de Majorana) sont gappées. Il s'avère que leur gap est non-trivial puisque les bandes de conduction et de valence se croisent (figure 1.12c). Afin qu'il y ait une continuité dans la topologie du gap entre le vide et le volume, celui-ci doit se fermer, c'est-à-dire qu'il doit y avoir des états de bord de Majorana conducteurs² (figure 1.12b).

Le modèle de Kitaev est important dans la communauté de la physique de la matière condensée, puisque la détection des fermions de Majorana, notamment par ces états de bord, serait une indication directe que le système est un LSQ. Kitaev a prédit que ces fermions de Majorana sont détectables via la conductivité thermique transverse, notée κ_{xy} , aussi appelée effet Hall thermique. Cette propriété de transport est mesurable expérimentalement et elle sera abordée dans le chapitre 3.

2. Étant donné que le système est un isolant de Majorana, les états de bord demeurent eux conducteurs par rapport au Majorana.

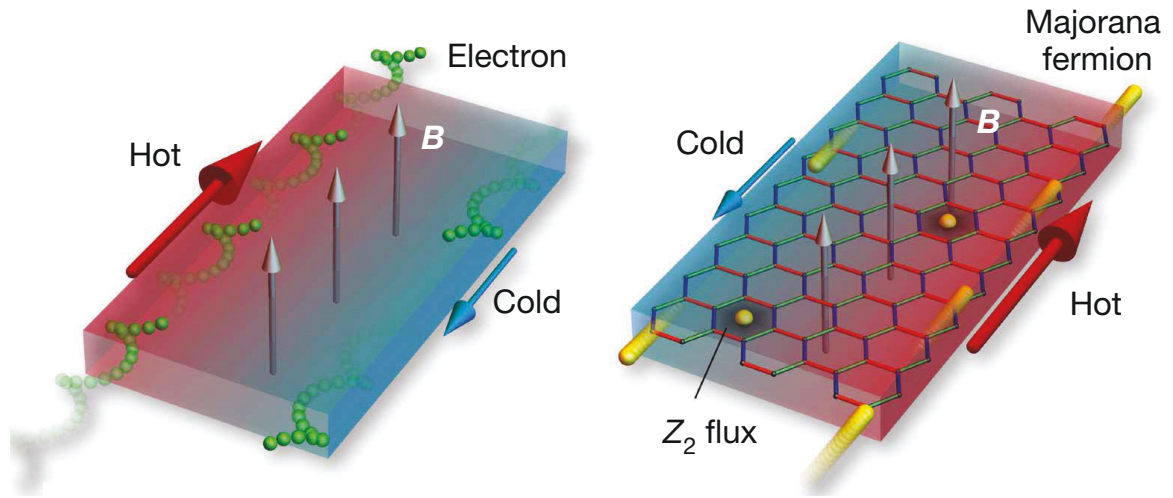


FIGURE 1.13 Schémas qui illustre l'effet Hall thermique (transport de chaleur transverse) des électrons dans un système bidimensionnel (gauche) et des fermions de Majorana dans le modèle de Kitaev (droite) lorsqu'un champ magnétique externe (ici noté B) est appliqué sur le système. Dans les deux cas, les fermions sont des états de bords topologiques chiraux (figure tirée de [5]).

Les fermions de Majorana des bords conduisent la chaleur de façon transverse à raison du demi-quantum de conductance thermique :

$$\frac{\kappa_{xy}^{2D}}{T} = \frac{\kappa_{xy}d}{T} = \frac{1}{2} \left(\frac{\pi k_B^2}{6\hbar} \right) \quad (1.8)$$

où $\pi k_B^2/6\hbar$ est le quantum de conductance thermique dont les unités sont exprimées en $[\text{Watt} \cdot \text{Kelvin}^{-2}]$ ³. d correspond à la distance entre deux plans bidimensionnels, donc il s'agit ici d'une quantité définie pour un seul plan bidimensionnel. Cette quantité correspond à la quantité de chaleur qu'un phonon balistique (non-diffusé) ou un électron dans une hétérostructure bidimensionnelle peut transporter (voir la figure 1.13). Il s'agit donc d'une quantité fondamentale. Le fait qu'un fermion de Majorana puisse transporter moitié moins de chaleur qu'un électron relève du nombre de degrés de liberté deux fois plus élevé que possède un électron par rapport à un fermions de Majorana, puisque le fermion de Majorana n'a pas de charge électrique.

3. En réalité, κ_{xy}/T s'exprime en $[\text{Watt} \cdot \text{Kelvin}^{-2} \cdot \text{mètre}]$ mais ici, il s'agit d'un canal de conduction unidimensionnel pour un fermion balistique.

1.2.3 Effet Hall thermique κ_{xy} dans un LSQ Kitaev

Une étude théorique de Nasu *et al.* [13] s'est penchée sur le transport thermique dans un LSQ Kitaev en utilisant des calculs *Monte Carlo* quantiques. L'étude porte sur l'effet Hall thermique κ_{xy}/T générés uniquement par les états de bord des fermions de Majorana, c'est-à-dire quand les fermions de Majorana sont gappés dans le volume par différentes valeurs de champ magnétique \tilde{h}/J (ici, $J = J_K$). La figure 1.14 met en évidence les calculs de κ_{xy}/T en fonction de la température T/J .

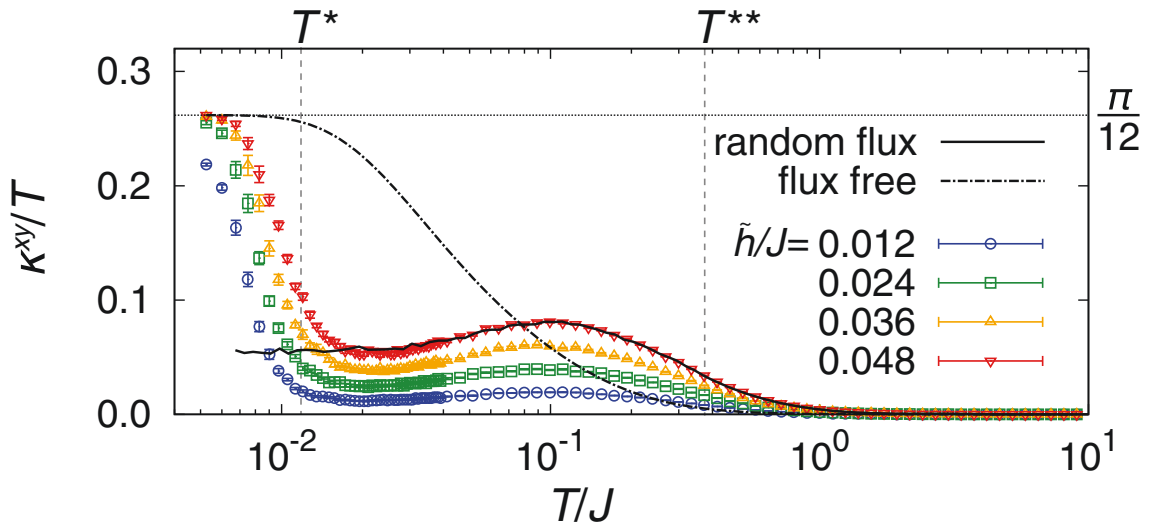


FIGURE 1.14 Graphique de l'effet Hall thermique des fermions de Majorana dans le modèle de Kitaev affiché comme κ_{xy}/T (en unité théorique; $k_B = \hbar = 1$) en fonction de la température normalisée T/J . Trois cas sont affichés : *random flux*, *flux free* et les simulations *Monte Carlo* quantiques pour différentes valeurs de champ magnétique \tilde{h}/J . Les températures caractéristiques T^* et T^{**} sont définies plus bas dans le texte (figure tirée de [13]).

Pour commencer, trois cas ont été considérées : (i) *flux free* (sans flux) en trait pointillé, (ii) *random flux* (flux aléatoires) en trait plein et (iii) les points de couleurs correspondant à différentes valeurs de champ magnétique en unité \tilde{h}/J . De plus, deux températures caractéristiques notées T^* et T^{**} peuvent être identifiées afin de séparer les différents comportements des courbes.

- (i) La courbe *flux free* a été obtenue en considérant l'absence de flux Z_2 à toutes températures pour un champ de $\tilde{h}/J = 0.048$, qui normalement agissent uniquement comme diffuseurs des fermions de Majorana et ne participent donc pas au transport thermique. En diminuant la température, on peut observer que κ_{xy}/T devient non-nul à partir

de $T/J \simeq T^{**}$ et augmente jusqu'à converger vers la valeur quantifiée prédite par le modèle de Kitaev (voir l'équation 1.8) où $k_B = \hbar = 1$, ici. T^{**} peut être considérée comme étant la température correspondant au gap des fermions de Majorana dans le volume, mentionné à la sous-section 1.2.2, c'est-à-dire lorsque les états de bords se forment. L'effet Hall thermique disparaît seulement lorsque la température dépasse la valeur du gap du volume puisque les quasi-particules du volume sont excitées, il n'y a plus d'états de bords.

- (ii) La courbe *random flux* a été obtenue en considérant la présence de flux Z_2 pour toutes les températures pour un champ de $\tilde{h}/J = 0.048$. κ_{xy}/T est identique au cas précédent à haute température. Cependant on note que la courbe ne converge pas vers la valeur quantifiée de l'équation 1.8 puisque la présence de flux Z_2 thermiquement excités diffusent les Majorana des états de bords sous T^{**} .
- (iii) Les courbes de couleurs correspondent au cas réaliste et ont été calculées en fonction de différentes valeurs de champ magnétique \tilde{h}/J . À haute température, les points rouges respectent la configuration *random flux*, ce qui supporte l'idée que l'effet Hall thermique non-nul pour $T/J < 1$ est causé par la diffusion des fermions de Majorana sur les flux Z_2 . Sous $T/J \simeq T^*$, les flux Z_2 sont gappés ($\Delta_{\text{flux}} = 0.065J_K \simeq T^*$) et donc lorsque $T \rightarrow 0$, de moins en moins de flux diffusent les Majorana des états de bords. L'effet Hall thermique peut donc converger vers la valeur quantifiée prédite par le modèle de Kitaev (voir l'équation 1.8) et qui était déjà obtenu pour le cas *flux free*.

On comprend de ce cas théorique que les fermions de Majorana des états de bords peuvent possiblement être observés par une mesure d'effet Hall thermique, cependant dans un intervalle de température assez restreint. Il est à noter que l'effet Hall thermique est expérimentalement généré par un champ magnétique uniquement et qu'il est nécessaire en général de dépasser les 1 Tesla pour se faire. Or, si l'on se place à basse température sous T^* et que l'on augmente le champ magnétique jusqu'à dépasser en énergie le gap des flux Z_2 , on peut se retrouver à avoir des flux dans la limite $T \rightarrow 0$, et retomber sur le cas (ii) des *random flux*, et ainsi perdre la quantification de κ_{xy}/T . La difficulté expérimentale derrière cette mesure est donc bien réelle.

Chapitre 2

$\alpha - \text{RuCl}_3$: un liquide de spin Kitaev ?

Certains matériaux dont la composition chimique est basée sur des terres rares ou certains métaux de transition et dont les couches $4d^5$ et $5d^5$ sont partiellement remplies, montrent des degrés de liberté électroniques, de spins et orbitaux très complexes. Ces nombreux degrés de liberté peuvent engendrer des corrélations électroniques, du couplage spin-orbite et des effets de champ cristallin importants [10]. Le diagramme de phase schématisé à la figure 2.1 met en évidence les différentes classes de matériaux en fonction de deux paramètres : les corrélations électroniques U et le couplage spin-orbite λ .

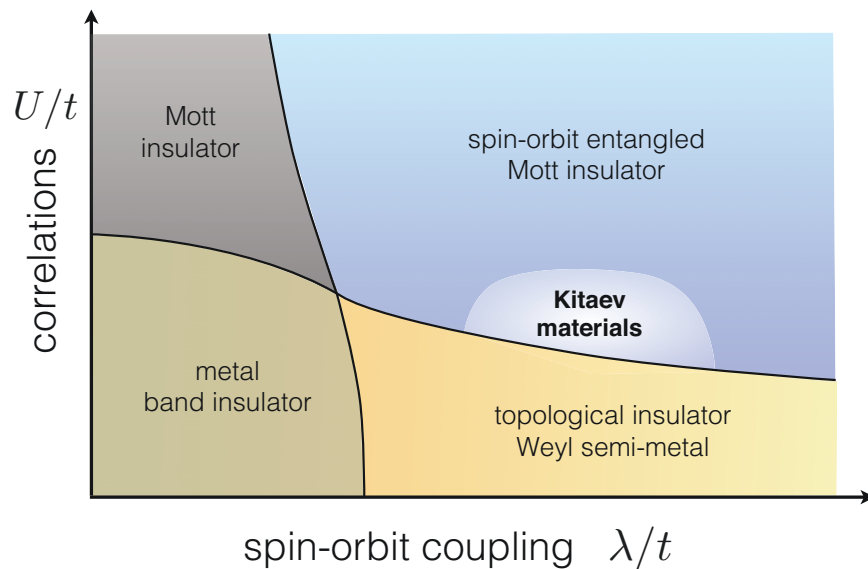


FIGURE 2.1 Forme générale du diagramme de phase qui tient compte des corrélations électroniques et du couplage spin orbite (normalisés par un terme de saut t , une énergie correspondant au mouvement d'un électron sur un site voisin). Les matériaux qui sont susceptibles d'être des liquides de spins Kitaev se situent dans le dôme blanc (figure tirée de [10]).

Les matériaux tels que certains iridates basés sur l'ion Ir^{4+} ($5d^5$) et ruthénates basés sur l'ion Ru^{3+} ($4d^5$) sont étudiés depuis quelques années, car ils présentent certains aspects qui sont susceptibles de remplir les conditions structurales et magnétiques pour le modèle de Kitaev. Depuis 2014, l'émergence d'un intérêt grandissant pour l'isolant électrique $\alpha - \text{RuCl}_3$ a engendré un très grand nombre de publications scientifiques en physique de la matière condensée. Ce matériau est un candidat prometteur dans la réalisation de la physique du modèle de Kitaev.

Dans ce chapitre, une revue de la littérature de $\alpha - \text{RuCl}_3$ expose un éventail de propriétés cristallines, magnétiques et spectroscopiques qui semblent pointer vers un matériau idéal pour réaliser la physique des liquides de spins Kitaev.

2.1 Structure cristalline

L'isolant électrique $\alpha - \text{RuCl}_3$ est un matériau quasi-bidimensionnel qui possède une structure cristalline hexagonale dans ses plans s'apparentant à un «nid d'abeilles». Dans la figure 2.2 est mise en évidence la structure cristalline de $\alpha - \text{RuCl}_3$.

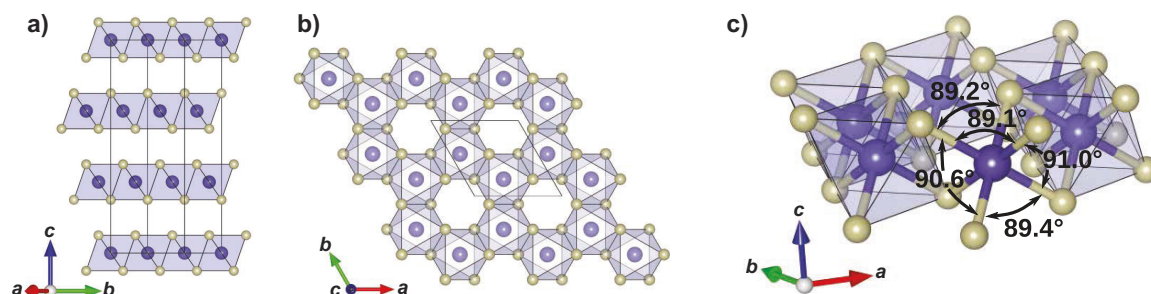


FIGURE 2.2 Structure cristalline de $\alpha - \text{RuCl}_3$: (a) vue de la tranche (selon l'axe c) révélant le caractère lamellaire des plans sans atomes intercalaires (b) vue du dessus des plan ab révélant les octaèdres de RuCl_6 se partageant les arêtes. Les atomes Ru au centre des hexagones forment ainsi une structure hexagonale (c) vue de la tranche (selon l'axe c) des angles d'environ 90° entre les liens $\text{Cl} - \text{Ru} - \text{Cl}$ (figure adaptée de [14]).

Les plans (figure 2.2a) sont constitués d'octaèdres RuCl_6 (figure 2.2b) qui sont disposés de façon à partager leurs arêtes les uns avec les autres. Le caractère très bidimensionnel de $\alpha - \text{RuCl}_3$ provient du fait qu'entre chaque plan (le long de l'axe c), il y a une absence d'atomes intercalaires. Ainsi, ce sont de faibles interactions de van der Waals qui permettent une cohésion et l'empilement entre les plans. Du point de vue d'un seul octaèdre, l'angle entre chaque lien $\text{Cl} - \text{Ru} - \text{Cl}$ est presque de 90° , à 1° près, rendant l'octaèdre quasi-idéal (figure 2.2c). De plus, la longueur des liens $\text{Ru}-\text{Cl}$ est presque équivalente pour tous au sein de l'octaèdre; soit environ 0.3% les uns des autres. Un octaèdre hautement symétrique est important puisque un tel environnement octaédrique laisse les orbitales t_{2g} dégénérées en énergie en absence de couplage spin-orbite [14]. Plus de détails sont présenté dans la section qui suit.

Les graphiques de la figure 2.3a et 2.3b montrent une courbe de chaleur spécifique en fonction de la température entre 0K et 250K où des *fits* sont tracés.

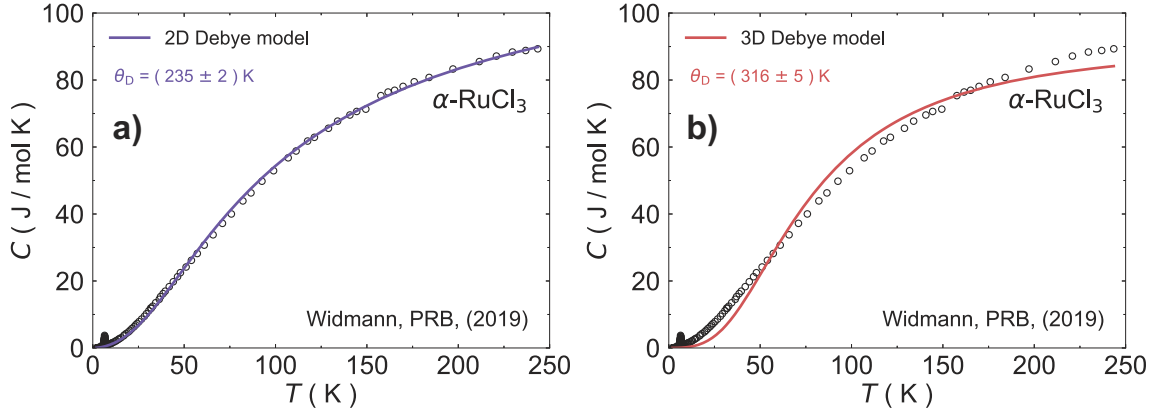


FIGURE 2.3 (a) Graphique de la chaleur spécifique en fonction de la température de $\alpha - \text{RuCl}_3$ où un *fit* du modèle de Debye pour un réseau bidimensionnel a été tracé. La température de Debye θ_D extraite du *fit* est de (235 ± 2) K. (b) Graphique de la chaleur spécifique en fonction de la température de $\alpha - \text{RuCl}_3$ où un *fit* du modèle de Debye pour un réseau tridimensionnel a été tracé. La température de Debye θ_D extraite du *fit* est de (316 ± 5) K. Cette valeur de température ne correspond pas à celle reportée dans la littérature (points expérimentaux tirés de [15]).

Les *fits* correspondent respectivement aux chaleurs spécifiques issues du modèle de Debye pour des réseaux 2D et 3D (équations 2.1).

$$C^{2D} = ANk_B \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^2 \int_0^{\frac{\theta_D}{T}} \frac{x^2 dx}{e^x - 1} \quad (2.1) \quad C^{3D} = BNk_B \left(\frac{T}{\theta_D} \right)^3 \int_0^{\frac{\theta_D}{T}} \frac{x^4 e^x dx}{(e^x - 1)^2} \quad (2.2)$$

où A et B sont des constantes, k_B est la constante de Boltzmann, N est le nombre d'atomes, θ_D est la température de Debye, T est la température et x est une variable sans unité.

Le modèle bidimensionnel représente très bien les points tandis que le modèle tridimensionnel non, témoignant ainsi du caractère très bidimensionnel de $\alpha - \text{RuCl}_3$. La température de Debye issue du *fit* du graphique de la figure 2.3a correspond assez bien à la température de Debye rapportée dans l'étude de Cao *et al.* [16] et celle de Banerjee *et al.* [17] de $\alpha - \text{RuCl}_3$ sous forme polycristalline (poudre).

2.2 Structure magnétique et interactions dépendantes des liens

L'isolant $\alpha - \text{RuCl}_3$ offre des conditions géométriques favorables aux liens directionnels du modèle Kitaev J_K^γ entre les sites adjacents de ruthénium. La structure géométrique au sein du matériau peut être attribuée à un équilibre entre champ cristallin et couplage spin-orbite. Sur la figure 2.4a, un octaèdre de RuCl_6 est illustré et sur la figure 2.4b, les orbitales d dans l'espace réel sont schématisées. Ces orbitales représentent en quelque sorte le nuage électronique dans la configuration octaédrique des atomes de chlore.

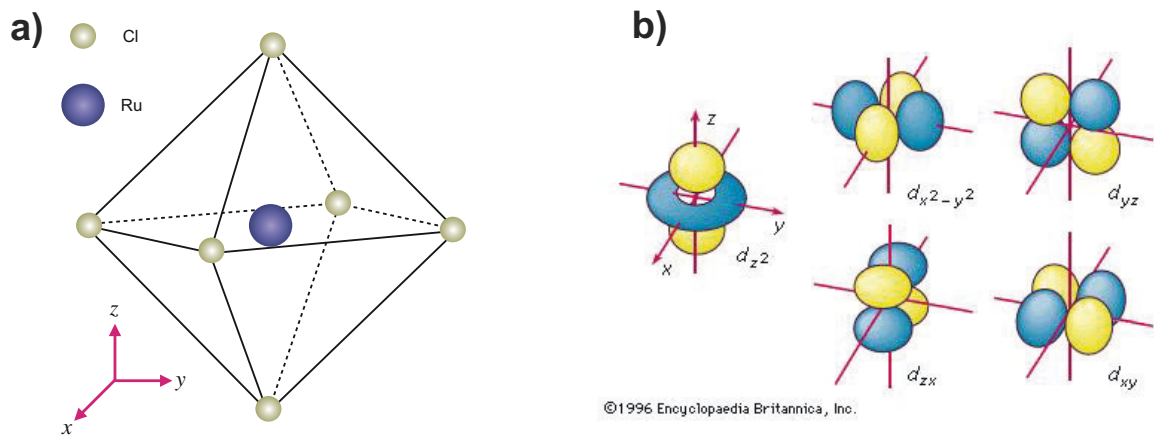


FIGURE 2.4 (a) Schéma d'un octaèdre défini par huit atomes de chlore dont le barycentre est un atome de ruthénium. (b) Illustration des orbitales électroniques d dont les orbitales $d_{x^2-y^2}$ et d_{z^2} définissent l'orbitale e_g tandis que les orbitales d_{xy} , d_{yz} et d_{zx} définissent l'orbitale t_{2g} .

Un octaèdre quasi-idéal dont l'ion Ru^{3+} et son orbitale $4d^5$ est le barycentre comme sur la figure 2.4a, favorise un champ cristallin qui sépare bien les orbitales e_g et t_{2g} en énergie. Cette bonne séparation engendre un état de spin $j = 1/2$ de cinq électrons dans l'orbitale t_{2g} , laissant vide l'orbitale e_g et de moment orbital effectif $\ell = 1$.

Le couplage spin-orbite tend à remplir le niveau $j = 3/2$ en laissant une bande à demi-remplie de spin $j = 1/2$. Cette configuration de bandes est favorable à l'ouverture d'un gap de Mott. La figure 2.5 schématise le principe.

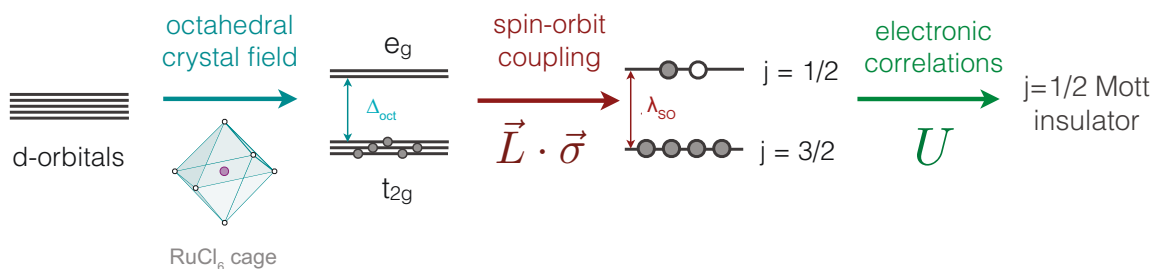


FIGURE 2.5 Schéma qui illustre la formation de spins effectifs $1/2$ pour des ions magnétiques de terre-rare d'orbitales d , notamment pour Ru^{3+} et Ir^{4+} (figure adaptée de [10]).

La structure électronique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ donne donc lieu à un état isolant de Mott assisté par couplage spin-orbite. Habituellement, les métaux de transition possèdent un assez large rayon atomique et permettent un certain chevauchement des électrons de valence, ce qui diminue les corrélations électroniques. Cependant, dans $\alpha - \text{RuCl}_3$, le couplage spin-orbite permet une réduction de ce chevauchement et donne lieu à une augmentation des corrélations électroniques.

$\alpha - \text{RuCl}_3$ peut donc être perçu comme étant un matériau dont un spin effectif $j = 1/2$ loge sur chaque ion de ruthénium Ru^{3+} . Maintenant, la question est de savoir si l'échange magnétique de cet isolant est favorable à l'existence des liens anisotropes J_K^x , J_K^y et J_K^z (voir l'équation 1.2) qui sont illustrés sur la figure 1.7. En 2009, une étude de Jackeli *et al.* [18] a révélé l'existence des liens anisotropes dans les iridates, ceci s'est avéré vrai pour $\alpha - \text{RuCl}_3$ aussi plus récemment [14].

Sur la figure 2.6, les vues du dessus des octaèdres permettent de distinguer deux façons de joindre ceux-ci dans la maille cristalline. Deux octaèdres adjacents joints par les sommets partagent un atome de chlore ; c'est une «liaison-180°». Par ailleurs, deux octaèdres adjacents joints par les arêtes partagent deux atomes de chlore : c'est une «liaison-90°».

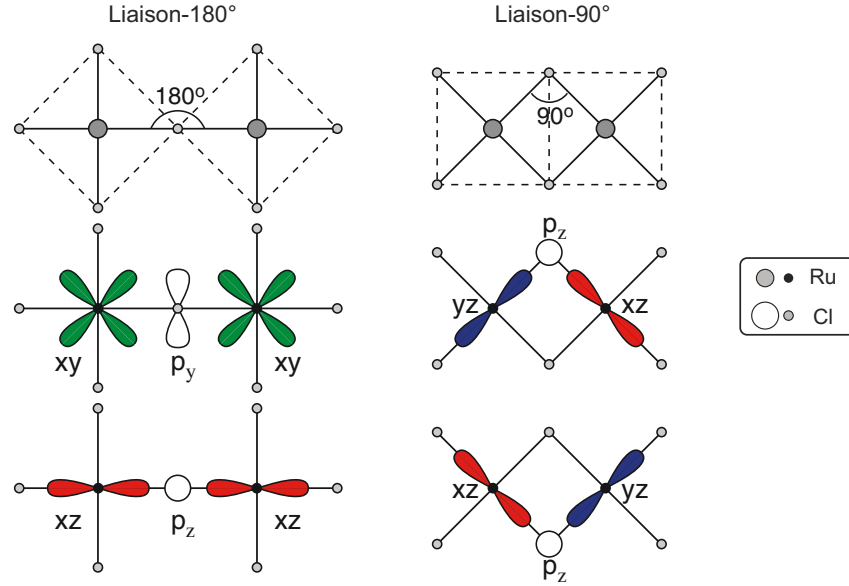


FIGURE 2.6 Schéma de deux géométries possibles pour une liaison Cl – Ru – Cl ; liaison-180° et liaison-90° (figure tirée de [18]). Les orbitales d_{xy} , d_{xz} et d_{yz} des atomes de ruthénium et les orbitales p_y et p_z des atomes d'oxygène sont mises en évidence selon différents axes.

L'étude de Jackeli *et al.* a montré que les électrons soumis à un terme de saut noté t_{pd} entre les orbitales d de l'ion de ruthénium et l'orbitale p_z des atomes de chlore (voir la figure 2.7) dans la configuration liaison-180° conservent leur spin ainsi que leur indice orbital ℓ . De cette façon, l'interaction Heisenberg est favorisée :

$$\mathcal{H}_{180^\circ} = J_1 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + J_2 (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{r}_{ij}) (\mathbf{r}_{ij} \cdot \mathbf{S}_j) \sim J \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (2.3)$$

où J_1 est un terme d'échange Heisenberg isotrope entre les spins des atomes de Ru et J_2 est aussi un terme d'échange qui couple les composantes de spins selon l'axe de liaison \mathbf{r} . Il s'avère qu'en général, $J_2 \ll J_1$, donc pour une liaison-180°, le terme de couplage est indépendant du lien.

À l'inverse, les électrons soumis au terme de saut entre les orbitales d de l'ion de ruthénium et l'orbitale p_z des atomes de chlore (voir la figure 2.7 dans la configuration liaison-90°) ne conservent pas leur indice orbital et les interactions Heisenberg sont supprimées au détriment d'interactions de type Ising qui agissent selon un axe de facile aimantation qui est perpendiculaire au plan défini par les liens Ru-Cl₂-Ru (c'est-à-dire l'interaction Kitaev). De cette façon, l'interaction Kitaev est favorisée :

$$\mathcal{H}_{90^\circ}^{(\gamma)} = -J^\gamma S_i^\gamma S_j^\gamma \quad (2.4)$$

où $\gamma = (x, y, z)$ et J^γ est l'interaction dépendante du lien. Le hamiltonien de l'équation 2.4 correspond bien au hamiltonien qu'a proposé Kitaev dans ses travaux (voir l'équation 1.2).

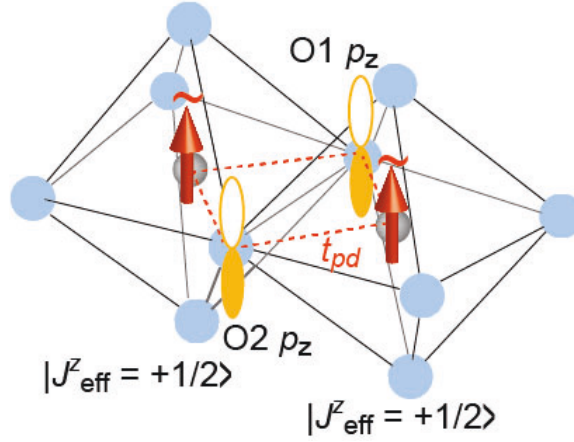


FIGURE 2.7 Schéma de deux octaèdres de RuCl_6 qui partagent une arête donne lieu à une liaison- 90° . Un terme de saut définit ici comme t_{pd} entre les orbitales d des atomes de Ru et les orbitales p_z des atomes de Cl change les orbitales d_{zx} pour d_{yz} et inversement, ne conservant donc pas l'indice orbital ℓ (figure tirée de [19]).

2.3 État fondamental

Bien que $\alpha - \text{RuCl}_3$ semble respecter toutes les conditions structurales et électroniques afin de réaliser la physique de Kitaev sur réseau hexagonal, cet isolant électrique s'ordonne antiferromagnétiquement à basse température (sous champ magnétique nul). Un ordre à longue portée de type AFM dit *zigzag* (schématisé à la figure 2.8a) s'établit sous une température $T_N = 7\text{K}$.

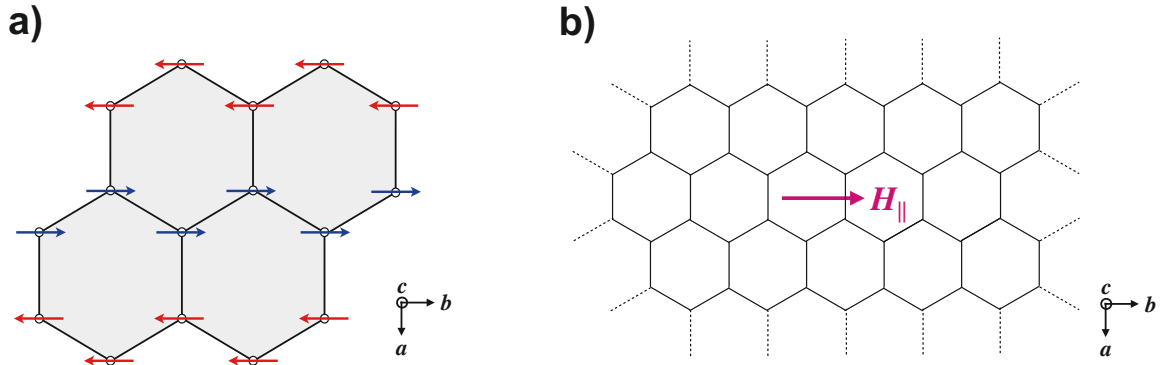


FIGURE 2.8 (a) Illustration de l'ordre AFM zigzag sur réseau hexagonal. (b) Illustration du champ magnétique dans le plan ab noté H_{\parallel} .

Les figures 2.9a et 2.9b mettent en évidence l'aimantation et la chaleur spécifique de deux échantillons différents de $\alpha - \text{RuCl}_3$ respectivement.

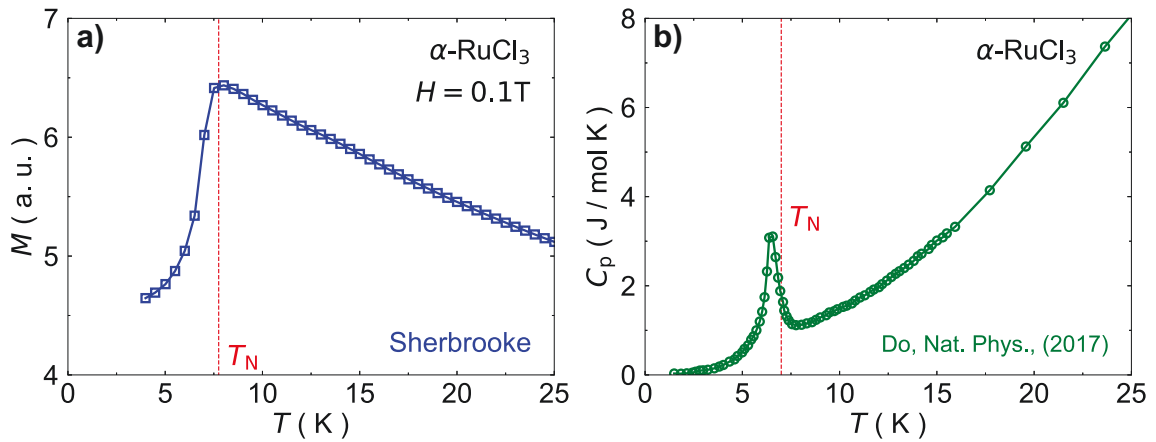


FIGURE 2.9 (a) Graphique de l'aimantation en fonction de la température de $\alpha - \text{RuCl}_3$ avec la transition AFM à T_N . (b) Graphique de la chaleur spécifique en fonction de la température de $\alpha - \text{RuCl}_3$ avec la transition AFM à T_N (figure reproduite à partir de [12]).

On note bien la transition AFM à T_N dans l'aimantation ainsi que l'anomalie dans la chaleur spécifique. Le fait que $\alpha - \text{RuCl}_3$ s'ordonne à basse température signifie donc qu'il existe dans le matériau des interactions plus conventionnelles que les interactions Kitaev, notamment des interactions Heisenberg et même des interactions Γ [20, 21] qui ont été d'abord étudiées dans certains iridates tels que Na_2IrO_3 et $\alpha - \text{Li}_2\text{IrO}_3$ [22, 23, 24]. Expérimentalement, il existe une façon de s'affranchir de cette phase magnétique afin de pouvoir explorer l'état sous-jacent. L'ordre à longue portée peut être supprimé en appliquant

un champ magnétique de 7.5T dans le plan ab (nommé H_{\parallel}) de $\alpha - \text{RuCl}_3$ comme illustré à la figure 2.8b.

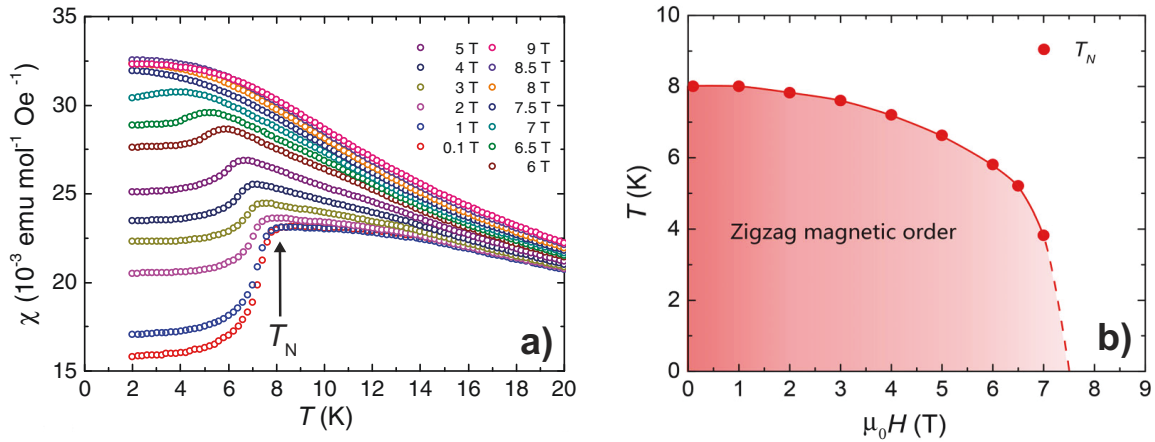


FIGURE 2.10 (a) Graphique de la susceptibilité magnétique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ en fonction de la température pour des valeurs de champ magnétique dans le plan comprises entre 0.1T et 9T. (b) Diagramme de phase magnétique expérimental de $\alpha - \text{RuCl}_3$ de $T_N - H_{\parallel}$ (figures adaptées de [25]).

Une étude de Yu *et al.* [25] a permis d'observer la disparition graduelle de l'ordre *zigzag* dans des mesures de susceptibilité magnétique en fonction de la température, mis en évidence sur le graphique de la figure 2.10a. La signature de l'ordre magnétique disparaît sur la courbe correspondant à 7.5T. Les auteurs de l'étude ont pu construire le dôme AFM en traçant la température de Néel T_N en fonction du champ magnétique dans le plan sur le graphique de la figure 2.10b.

2.4 Diagramme de phase magnétique

Comme il a été abordé dans la section précédente, $\alpha - \text{RuCl}_3$ montre un état fondamental antiferromagnétique *zigzag* dans la limite $T \rightarrow 0$ et non un état magnétiquement désordonné, comme un liquide de spins. Mais tout n'est pas perdu pour autant. En effet, il est expérimentalement possible de détruire cet ordre magnétique et d'espérer recouvrer la physique d'un liquide de spin en appliquant un champ magnétique dans le plan d'au minimum 7.5T lorsque l'ordre *zigzag* est supprimé. Cette présente section s'intéresse au diagramme de phase magnétique complet de l'isolant $\alpha - \text{RuCl}_3$ et met en lumière certaines expériences qui sont en faveur d'un possible état LSQ Kitaev.

Sur la figure 2.11, est représenté le diagramme de phase magnétique température-champ magnétique dans le plan H_{\parallel} de $\alpha - \text{RuCl}_3$. Bien que les régions 2 et 3 ne fassent pas encore consensus, ce diagramme permet d'apprécier les différentes régions identifiées par les cercles gris.

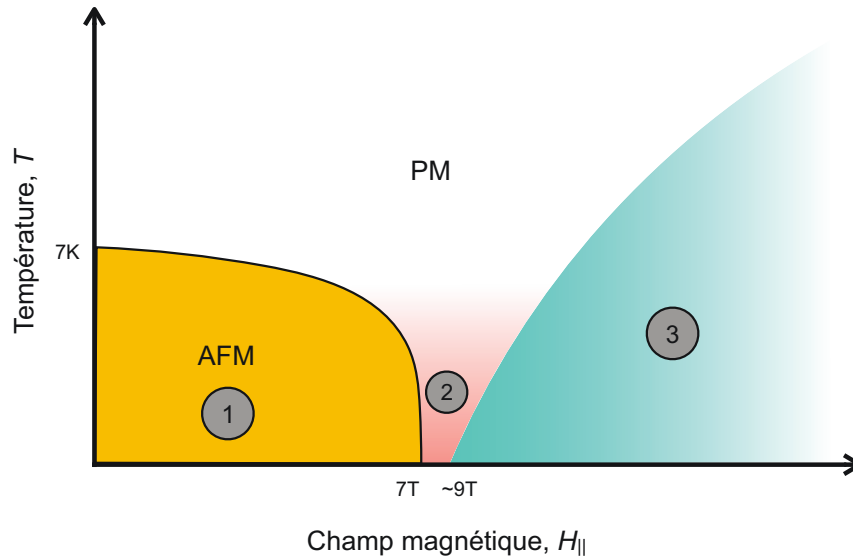


FIGURE 2.11 Diagramme de phase magnétique schématisé de $\alpha - \text{RuCl}_3$ de la température T en fonction du champ magnétique dans le plan H_{\parallel} tel que suggéré par maintes études (voir ci-bas dans le texte). À haute température, l'isolant affiche une phase paramagnétique, le dôme AFM *zigzag* est restreint à 7K et à 7T. Une phase polarisée de spins apparaîtrait vers 9T et entre les deux ordres magnétique, sur une étroite région de H_{\parallel} , un état désordonné de spins semble être observé dans la littérature [5, 26]. Cette zone est toujours sujette à débat.

1. La région 1 correspond au dôme AFM qui est sans aucun doute la région du diagramme de phase de $\alpha - \text{RuCl}_3$ qui a été la plus étudiée depuis les dernières années à l'aide de différentes techniques expérimentales telles que l'aimantation [5, 27, 28, 29], la chaleur spécifique [5, 28, 29, 30, 31], la susceptibilité magnétique [25, 32], la conductivité thermique [5, 33, 34], la résonance magnétique nucléaire [30, 35], la diffraction de neutrons [28] et l'effet magnétocalorique [26].
2. La région 2 est sujette à débats, puisque certaines études mettent en évidence une région sans ordre magnétique [5, 26] tandis que d'autres non [29, 33, 28, 31, 30].
3. La région 3 correspond, quant à elle, à une région magnétique qui soulève, à ce jour, des questions quant à sa nature. Elle a été étudiée notamment par des mesures expérimentales de chaleur spécifique [28, 31], de résonance magnétique nucléaire [29, 30], de conductivité thermique [33], d'effet Hall thermique [5] et de diffraction de neutrons [26].

L'étude de Balz *et al.* [26] est une des plus récentes études du diagramme de phase de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et elle constitue la seule étude qui met en lumière des données jusqu'à des températures aussi basses que 0.5K.

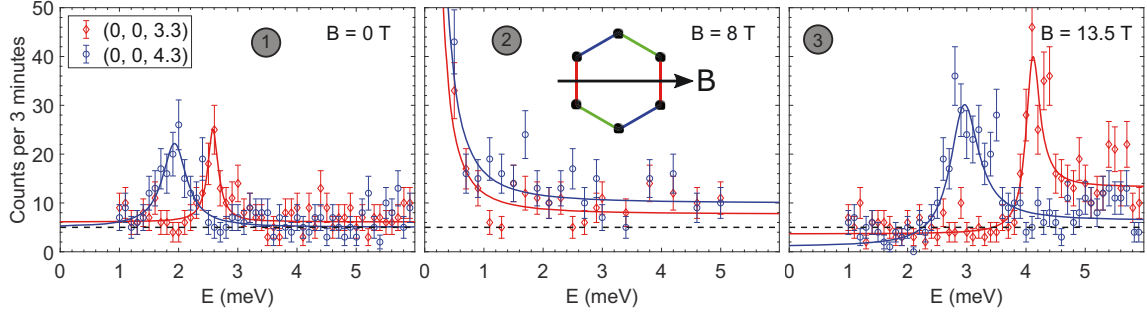


FIGURE 2.12 Graphiques de la dépendance en champ de la diffusion inélastique de neutrons pour deux valeurs de vecteur d'onde AFM à 1.5K. Les trois régions du diagramme de phase de la figure 2.11 sont étudiées ici (figure tirée de [26]).

Sur la figure 2.12, des graphiques de diffusion inélastique de neutrons à 1.6K pour différentes valeurs de champ magnétique dans le plan (ici noté B) mettent en évidence les trois différentes zones du diagramme de phase de la figure 2.11, où les chiffres 1, 2 et 3 correspondent dans les deux figures. Selon les auteurs, les pics dans les courbes bleue et rouge correspondent à des pics de magnons issus de l'ordre AFM à champ magnétique nul (chiffre 1). Pour les courbes à un champ magnétique de 13.5T où l'ordre AFM (dôme orange de la figure 2.11) est supprimé, une autre signature magnétique est observée, soient des pics de magnons dans les courbes bleue et rouge (chiffre 3). Les auteurs croient que la zone bleu pâle du diagramme de phase de la figure 2.11 correspondrait à une phase polarisée en spins, d'où l'observation d'un ordre à longue portée. Il s'avère que les auteurs de l'étude observent sans équivoque l'absence d'un ordre magnétique lorsque le champ dans le plan ab est à 8T, zone qui correspond à la région rosée du diagramme de phase de la figure 2.11 (chiffre 2). Il s'agit d'une observation forte puisque l'étude de Balz *et al.* rapporterait un état désordonné de spins à très basse température (jusqu'à 0.5K dans l'étude) où il serait possible d'observer l'état LSQ dans la limite $T \rightarrow 0$.

2.5 Fermions de Majorana dans $\alpha - \text{RuCl}_3$

En 2018, l'étude de Kasahara *et al.* [5] a rapporté la quantification de l'effet Hall thermique dans la région 2 du diagramme présenté dans la section précédente, c'est-à-dire dans cette zone libre de tout ordre magnétique. Il s'agit de la seule observation directe à ce jour des fermions de Majorana prédits par le modèle de Kitaev et abordés à la section 1.2. Ces résultats n'ont pas encore été reproduits.

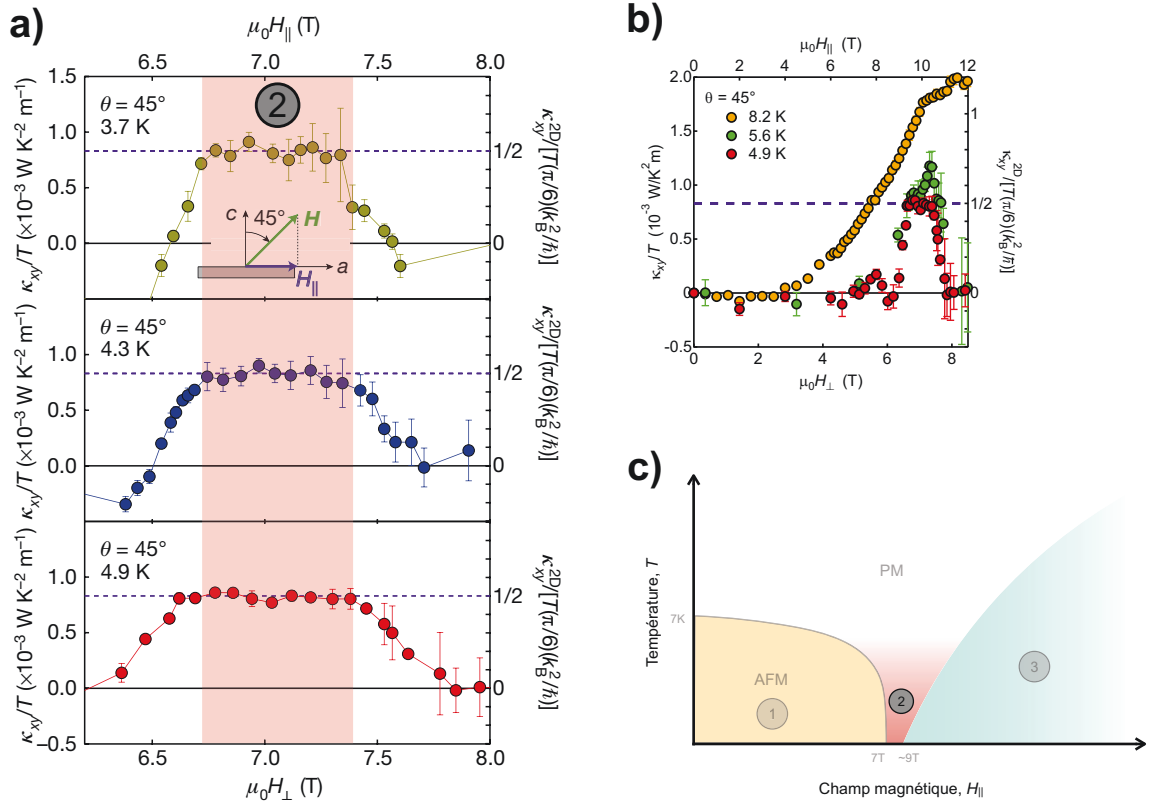


FIGURE 2.13 (a) Graphiques de κ_{xy}/T en fonction des champs dans le plan ($H_{||}$ qui permet de supprimer l'ordre AFM) et hors-plan (H_{\perp} qui permet de générer l'effet Hall thermique). L'angle θ de 45° est l'angle de H par rapport à l'axe c de l'échantillon et il permet d'obtenir les deux composantes du champ magnétique $H_{||}$ et H_{\perp} . La ligne pointillée magenta correspond à la valeur quantifiée de κ_{xy}/T prédite par le modèle de Kitaev. Pour des températures inférieures à environ 5K et sur un intervalle restreint de $H_{||}$, l'effet Hall thermique est quantifié. La région ombragée rouge pâle correspond à la région 2 du diagramme de phase (figure adaptée de [5]). (b) Graphique de κ_{xy}/T en fonction des champs dans le plan et hors-plan. La quantification de l'effet Hall thermique disparaît lorsque la température est supérieure à environ 5K (figure tirée de [5]). (c) Diagramme de phase schématisé de $\alpha - \text{RuCl}_3$ dont l'observation des fermions de Majorana (quantification de κ_{xy}/T) survit dans la région 3.

Sur la figure 2.13a, le graphique d’une étude de l’effet Hall thermique en champ magnétique H_{\parallel} montre que pour des températures entre 3.7K et 4.9K, κ_{xy}/T est quantifiée à raison du demi quantum de conductance thermique de l’équation 1.8 pour un faible intervalle de champ magnétique (de largeur d’environ 1T) autour de 7T. Ce résultat est en accord avec l’observation d’un état désordonné de spins par Balz *et al.* [26] où il serait possible d’observer un LSQ Kitaev. Le plateau correspondant à la quantification de l’effet Hall thermique ne peut être observé que sur intervalle restreint en champ magnétique, comme le montre le graphique de la figure 2.13b. En effet, l’observation des fermions de Majorana tient sur un faible intervalle de champ puisqu’une phase polarisée magnétique apparaît tout près de la fin du dôme AFM comme schématisé à la figure 2.13c.

L’étude de Kasahara *et al.* [5] constitue un résultat majeur dans la communauté scientifique de la matière condensée, plus particulièrement dans celle des liquides de spins quantiques. En effet, ce résultat doit être reproduit, puisque leur étude est la seule à ce jour à avoir présenté un effet Hall thermique quantifié. La confirmation de la quantification de l’effet Hall thermique donc l’observation des fermions de Majorana dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ constituerait une avancée majeure dans la physique des matériaux quantiques et en informatique quantique, puisque les fermions de Majorana sont de sérieux candidats de *qubits* qui seraient robustes à la décohérence et au bruit environnant. De plus, la reproduction de cette mesure constituerait un résultat important dans le transport quantique dans un gaz bidimensionnel de quasi-particules, tout comme l’a été la découverte de l’effet Hall quantique en 1980. La quantification de κ_{xy}/T dans un LSQ Kitaev est l’analogue thermique de l’effet Hall quantique. Cet objectif consite en la motivation première du projet décrit dans ce mémoire.

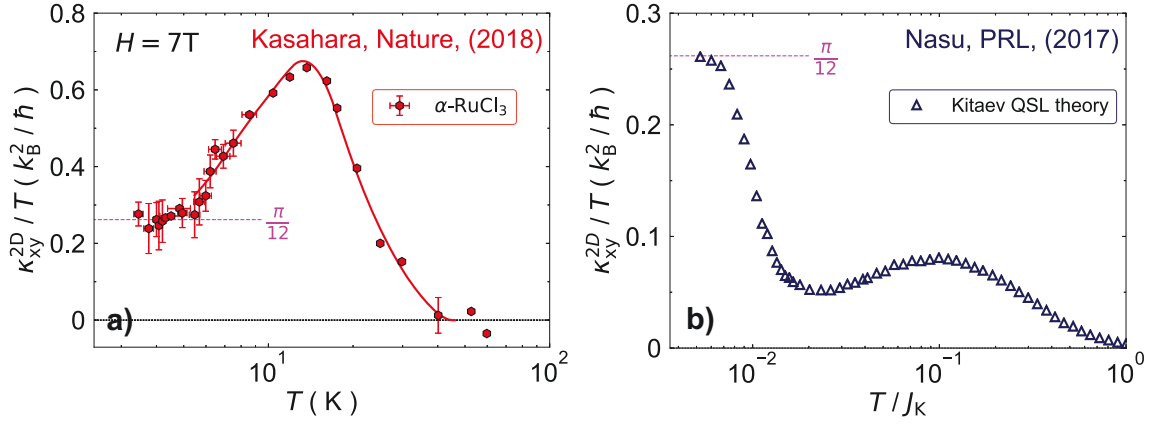


FIGURE 2.14 Graphiques de κ_{xy}/T (exprimé en unités 2D de k_B^2/\hbar) en fonction de la température (a) des points expérimentaux (figure reproduite à partir de [5]) et (b) issu de calculs théoriques (J_K est l'énergie caractéristique de Kitaev) (figure reproduite à partir de [13]). La valeur quantifiée de l'effet Hall thermique est représentée par la ligne pointillée magenta. Note : le trait plein rouge est un guide pour l'oeil.

Bien que l'observation des fermions de Majorana par Kasahara *et al.* semble démontrer que α -RuCl₃ soit un LSQ Kitaev, certains éléments de leurs données doivent être éclaircis. En effet, la figure 2.14 compare κ_{xy}/T en unité théorique en fonction de la température normalisée par l'énergie caractéristique du modèle de Kitaev J_K . Sur le graphique de la figure 2.14a, les points expérimentaux issus de [5] montrent un pic prononcé avant de saturer vers $\pi k_B^2/12\hbar$ (ici, $k_B = \hbar = 1$) tandis que sur le graphique de la figure 2.14b, la courbe théorique issue de [13] montre un pic beaucoup moins prononcé et sature vers le haut. Comme il a été expliqué dans la section 1.2, la courbe théorique n'explique que la contribution des états de bord (les fermions de Majorana) à l'effet Hall thermique, ce qui n'est pas le cas des points expérimentaux, puisque comme mentionné dans la section 2.3, d'autres interactions sont présentes dans α -RuCl₃ comme des interactions de Heisenberg. La présence d'autres interactions peut contribuer au transport thermique transverse. Des études théoriques de Vinkler-Aviv *et al.* [36] et de Ye *et al.* [37] ont permis de conclure que les fermions de Majorana pourraient se coupler aux phonons et pourraient participer à la conduction thermique de Hall comme états de bord. Il a été montré dans ces études que les fermions de Majorana afficheraient tout de même $\kappa_{xy}/T \simeq \pi k_B^2/12\hbar$ dans certaines limites. un effet Hall thermique pourrait provenir des phonons, hypothèse qui est abordée dans le chapitre 4.

2.6 Motivations du projet de maîtrise

Les chapitres 1 et 2 se veulent une revue de la littérature sur les éléments théoriques importants des liquides de spins quantiques ainsi que sur les propriétés et l'état de l'art de $\alpha - \text{RuCl}_3$ respectivement. Il reste que plusieurs aspects doivent être investigués davantage tels que la nature de l'état magnétique qui se situe au-dessus de $H_{\parallel} = 7\text{T}$ du diagramme de phase et s'il existe bel et bien une région restreinte en H_{\parallel} désordonnée à $T \rightarrow 0$ qui se situe entre la phase antiferromagnétique et la phase polarisée (toujours sujette à débat) (voir la figure 2.11).

Outre le diagramme de phase, des questions demeurent sur $\alpha - \text{RuCl}_3$: Les fermions de Majorana sont-ils bel et bien observables dans l'effet Hall thermique comme le prétendent les auteurs de Kasahara *et al.* [5] ? Quelle est la nature des porteurs de chaleur dans le matériau ; les phonons contribuent-ils à κ_{xy} ? $\alpha - \text{RuCl}_3$ est-il bien décrit par le modèle de Kitaev ? Quels éléments le transport de chaleur peut-il apporter de plus dans la compréhension de ce matériau ?

Si l'observation des fermions de Majorana dans l'effet Hall thermique était corroborée par d'autres groupes de recherche dans des échantillons différents que ceux utilisés dans l'étude du groupe japonais [5], cela constituerait un résultat majeur dans la communauté de la matière condensée. Il s'agirait là d'un phénomène analogue à l'effet Hall quantique électrique ainsi que d'une prouesse expérimentale car cette mesure pose de nombreux défis expérimentaux (cet aspect est abordé dans le chapitre 3).

2.7 État de l'art de la conductivité thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$

À ce jour, peu d'études de la conductivité thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ sont rapportées dans la littérature. Une seule étude de κ_{xx} sous 1K est parue [25] et six études au-dessus de 1K ont été publiées [5, 33, 34, 38, 39, 40].

2.7.1 Basses températures ($T < 1\text{K}$)

L'étude de Yu *et al.* [25] rapporte une étude en champ magnétique dans le plan de κ_{xx} à basse température ($T < 1\text{K}$). Les trois différentes régions du diagramme de phase de la figure 2.11 sont couvertes ($0\text{T} < H_{\parallel} < 9\text{T}$).

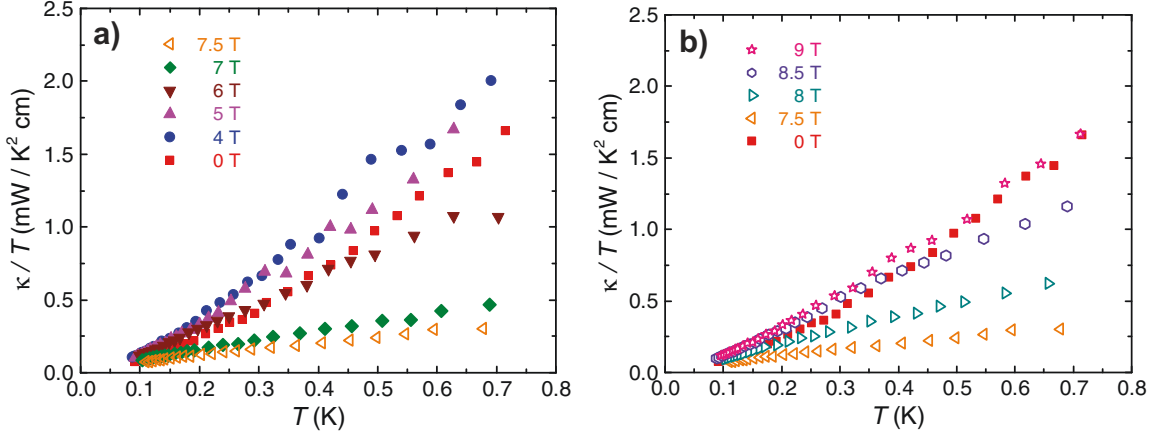


FIGURE 2.15 (a) Conductivité thermique tracée comme κ/T en fonction de la température pour différentes valeurs de champ magnétique dans le plan ab de $\alpha - \text{RuCl}_3$. Seule les valeurs de champ de l'ordre AFM sont affichées. (b) Conductivité thermique tracée comme κ/T en fonction de la température pour différentes valeurs de champ magnétique dans le plan ab de $\alpha - \text{RuCl}_3$. Seule les valeurs de champ de l'ordre polarisé de spins sont affichées. (figures adaptées de [25]).

Les auteurs de cette étude observent une nette suppression de κ_{xx} lorsque l'ordre magnétique AFM *zigzag* disparaît qui serait causé par la diffusion des phonons sur des fluctuations magnétiques. De plus, ils n'observent pas de terme résiduel linéaire dans κ_{xx}/T dans la limite $T \rightarrow 0$ pour toute valeur de champ dans le plan H_{\parallel} , ce qui pointe vers le scénario qu'aucune excitation fermionique non-gappée (*e. g.* des fermions de Majorana) participe au transport de chaleur (seuls les phonons participent).

2.7.2 Hautes températures ($T > 1\text{K}$)

$$\kappa_{xx}; \vec{H} (\vec{H} \parallel \hat{c})$$

Les études de Hentrich *et al.* [38] et de Kasahara *et al.* [40] rapportent des études de la conductivité thermique à haute température ($T > 1\text{K}$) comme le montrent les figures 2.16a et 2.16b respectivement. La température de Néel T_N est observable dans κ_{xx} et la faible diminution de κ_{xx} sous champ magnétique est attribuable, selon les auteurs de Hentrich *et al.*, à une augmentation de la diffusion spin-réseau.

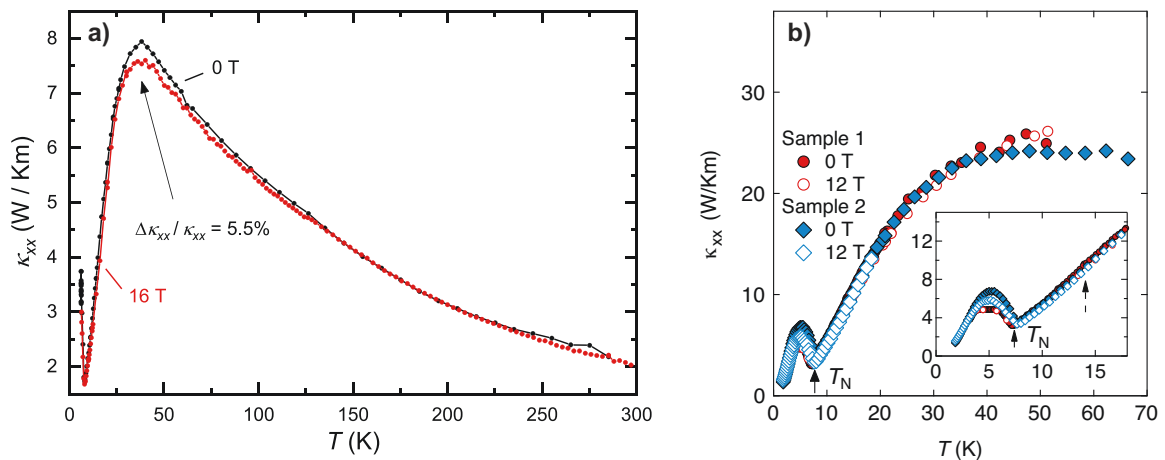


FIGURE 2.16 (a) Conductivité thermique en fonction de la température à $H = 0\text{ T}$ et $H = 16\text{ T}$. La remontée du signal sous 7K correspond à l'ordre AFM (figure adaptée de [38]). (b) Conductivité thermique en fonction de la température à $H = 0\text{ T}$ et $H = 12\text{ T}$ deux échantillons différents. La remontée du signal sous 7K correspond à l'ordre AFM (figure adaptée de [40]).

L'augmentation de la conductivité thermique sous 7K est due au fait que les fluctuations magnétiques sont gappées et donc celles-ci diffusent moins les phonons.

$$\kappa_{ab}, \kappa_c; \vec{H}_{\parallel} (\vec{H} \parallel ab)$$

Une étude de Hentrich *et al.* [33] a montré que l'application d'un champ magnétique dans le plan supérieur à 7.5T (le champ où l'ordre magnétique est supprimé) permet l'observation d'un régime magnétique différent de l'ordre magnétique AFM. Les figures 2.17a et 2.17b montrent respectivement κ_{ab} et κ_c en fonction de la température à 0T et 16T.

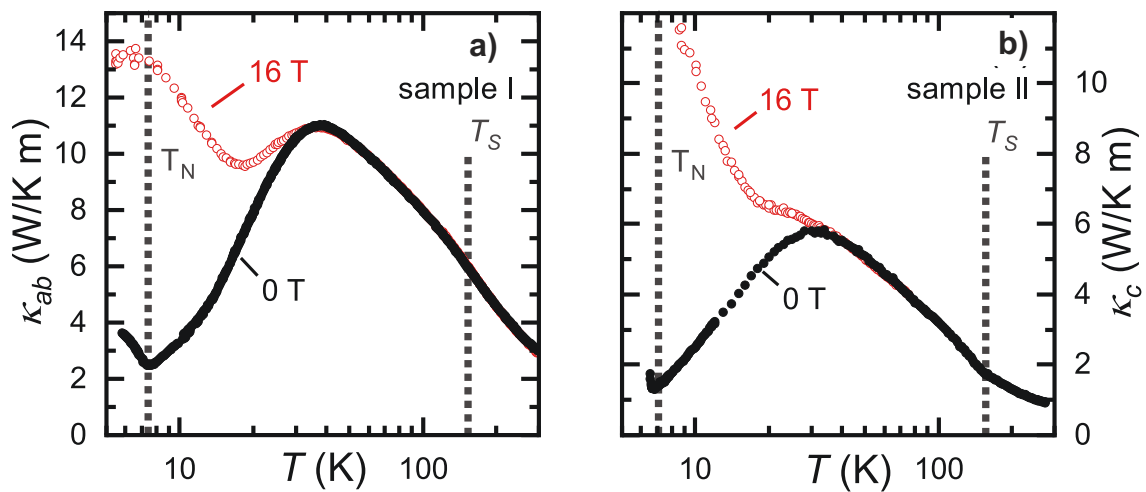


FIGURE 2.17 (a) Conductivité thermique dans le plan ab κ_{ab} en fonction de la température à $H_{||} = 0$ T et $H_{||} = 16$ T. Les remontées des signaux correspondent respectivement à l'ordre AFM (points noirs) et à l'ordre polarisé de spins (points rouges). (b) Conductivité thermique hors-plan ab κ_c en fonction de la température à $H_{||} = 0$ T et $H_{||} = 16$ T. Les remontées des signaux correspondent respectivement à l'ordre AFM (points noirs) et à l'ordre polarisé de spins (points rouges) (figures adaptées de [33]).

Les conductivités thermiques augmentent dramatiquement à basse température et d'après les auteurs de l'étude, l'augmentation du champ magnétique dans le plan dans l'ordre polarisé magnétique engendre l'ouverture d'un gap des excitations magnétiques qui diffusent moins les phonons.

Chapitre 3

Méthodes expérimentales

Ce chapitre a pour objectif d'offrir une description sommaire de la procédure expérimentale qui a servi, au cours de ce mémoire, à procéder à des mesures de conductivités thermiques longitudinale et transverse. Ce chapitre est fortement inspiré de la thèse de Gaël Grissonnanche, un ancien étudiant au doctorat du groupe Taillefer, qui a procédé aux mêmes manipulations expérimentales dans les cuprates. Voici le lien qui permet de consulter sa thèse : [Savoirs UdeS \[41\]](#).

L'équation maîtresse sur laquelle repose ce mémoire est l'équation de Fourier 3.1, la loi de la conduction de la chaleur. Le taux de transfert de chaleur à travers un matériau est proportionnel au gradient négatif de chaleur qu'engendre l'excitation thermique.

$$J_Q = -\overleftrightarrow{\kappa} \nabla T \quad (3.1)$$

où J_Q est la densité de flux de chaleur, $\overleftrightarrow{\kappa}$ est le tenseur de conductivité thermique et T est la température.

3.1 Principe de mesure

3.1.1 Conductivité thermique longitudinale κ_{xx}

La conductivité thermique longitudinale κ_{xx} est une quantité qui est mesurée en laboratoire. Cette propriété s'obtient en appliquant un courant de chaleur à une des extrémités d'un échantillon dont l'autre extrémité est connectée à un bain thermique. Une différence de température est alors mesurée entre deux points le long de la direction longitudinale x (dans le sens du courant thermique). Le principe est illustré sur la figure 3.1.

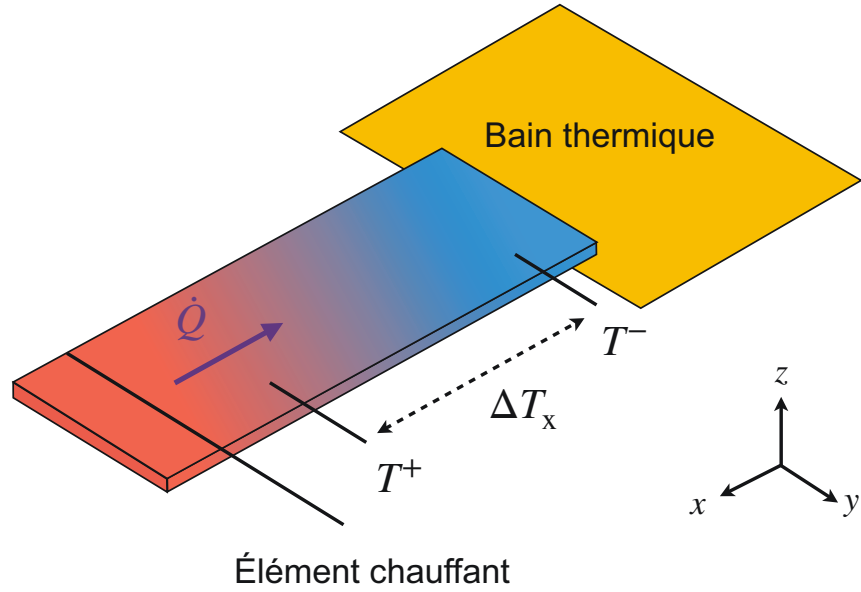


FIGURE 3.1 Schéma d'une mesure de conductivité thermique longitudinale κ_{xx} . Le gradient de couleur représente le gradient thermique $\Delta T = T^+ - T^-$ où T^+ et T^- sont respectivement les températures chaude et froide. \dot{Q} est le courant de chaleur envoyé dans l'échantillon (rouge : chaud, bleu : froid) (figure adaptée de [42]).

Montrons comment s'obtient la conductivité thermique longitudinale κ_{xx} en l'absence de champ magnétique H lorsque le courant de chaleur est selon la direction x , à partir de l'équation maîtresse 3.1 :

$$\begin{pmatrix} J_Q^x \\ 0 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \kappa_{xx} & \kappa_{xy}(H) \\ -\kappa_{yx}(H) & \kappa_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{\partial T}{\partial x} \\ \frac{\partial T}{\partial y} \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

En l'absence de champ magnétique, les conductivités thermiques transverses sont nulles, donc $\kappa_{xy}(0) = -\kappa_{yx}(0) = 0$. L'équation 3.2 devient donc la suivante :

$$J_Q^x = -\kappa_{xx} \frac{\partial T}{\partial x} \quad (3.3)$$

La densité de flux de chaleur J_Q^x est liée à la puissance thermique $\partial Q / \partial t$ de la façon suivante :

$$\frac{\partial Q}{\partial t} = \dot{Q} = \iint_S J_Q \cdot d\mathbf{S} = J_Q^x wt \quad (3.4)$$

où w et t sont les dimensions de la section transverse S à travers laquelle le chaleur passe. D'après l'équation de la chaleur, la variation de température est linéaire en fonction de x , on peut approximer :

$$-\frac{\partial T}{\partial x} \simeq \frac{\Delta T_x}{L} = \frac{T^+ - T^-}{L} \quad (3.5)$$

où le gradient de température longitudinal peut être approximé comme une simple différence de température par rapport à la distance L séparant les deux points (chaud T^+ et froid T^-). Ainsi, la formule qui permet de mesurer expérimentalement la conductivité thermique est la suivante :

$$\kappa_{xx} = \frac{\dot{Q}}{\alpha \Delta T_x} \quad (3.6)$$

où $\alpha = wt/L$ est le facteur géométrique de l'échantillon. La formule 3.6 dépend de quantités qui sont mesurables expérimentalement.

3.1.2 Dépendance en température de κ_{xx} d'un isolant électrique

La conductivité thermique est une sonde expérimentale sensible aux types de porteurs de chaleur ainsi qu'aux processus diffusifs. La conductivité thermique est le résultat de la somme des contributions de chaque type de porteurs de chaleur au sein du matériau, ainsi :

$$\kappa_{xx} = \kappa_{xx}^e + \kappa_{xx}^{ph} + \kappa_{xx}^{mag} + \kappa_{xx}^{spin} + \dots \quad (3.7)$$

La contribution d'un type de porteur de chaleur est additive à la conductivité totale et elle peut provenir de toutes sortes d'excitations qui obéissent à une certaine loi en fonction de la température, les plus communes sont les électrons, les phonons, les magnons, *etc.* Dans le cas d'un matériau isolant, la contribution des électrons à la conductivité thermique κ_{xx}^e est nulle, et les phonons contribuent majoritairement au transport de chaleur.

Ainsi pour un isolant électrique non-magnétique, la conductivité thermique provient principalement des phonons κ_{ph} et vaut :

$$\kappa_{ph} = \frac{1}{3} C_{ph} v_{ph} \ell_{ph} \quad (3.8)$$

où C_{ph} est la chaleur spécifique des phonons, v_{ph} est la vitesse des phonons et ℓ_{ph} est le libre parcours moyen des phonons. Étant donné que le libre parcours moyen dépend fortement de la température, la dépendance en température de κ_{ph} peut être attribuée à trois mécanismes de diffusions des phonons qui sont portés dans le tableau 3.1.

| Régime | Diffuseurs | κ_{ph} |
|------------------|--------------------------|---------------------------|
| $T \ll \theta_D$ | Limites de l'échantillon | T^3 |
| $T < \theta_D$ | Impuretés | $e^{-\frac{\theta_D}{T}}$ |
| $\theta_D < T$ | Phonons | $\frac{1}{T}$ |

TABLE 3.1 Tableau des différents régimes de température pour les différents diffuseurs des phonons dans un isolant électrique ainsi que la dépendance en température de la conductivité thermique [43].

La figure 3.2 montre le schéma de la dépendance en température de la conductivité thermique des phonons. La température de Debye θ_D est généralement de l'ordre de quelques centaines de Kelvins dans les isolants et le pic de conductivité des phonons se situe généralement entre $T \simeq 0.05\theta_D$ et $T \simeq 0.1\theta_D$.

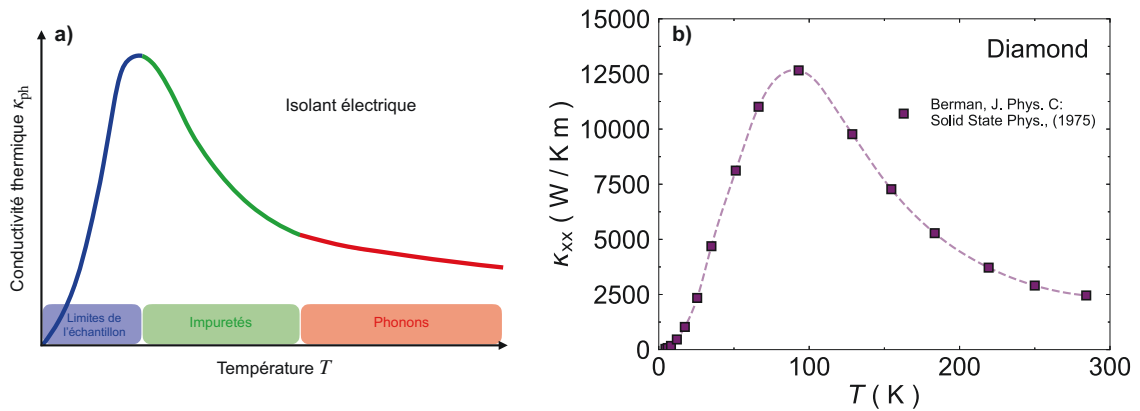


FIGURE 3.2 (a) Graphique schématique de la dépendance en température de κ_{ph} d'un isolant électrique typique où les différents diffuseurs correspondent aux régions colorées. La dépendance en température de κ_{ph} de chaque région est inscrite dans la dernière colonne du tableau 3.1. [43]. (b) Graphique de la conductivité thermique en fonction de la température du diamant, un des meilleurs conducteurs de chaleur (figure reproduite à partir de [44]). *Note* : le trait pointillé mauve est un guide pour l'oeil.

3.1.3 Conductivité thermique transverse κ_{xy}

La conductivité thermique transverse κ_{xy} est une quantité qui est aussi mesurée en laboratoire. En ajoutant un champ magnétique externe H perpendiculaire à la direction du courant de chaleur, on génère une différence de température le long de la direction transverse y . Le principe est illustré sur la figure 3.3.

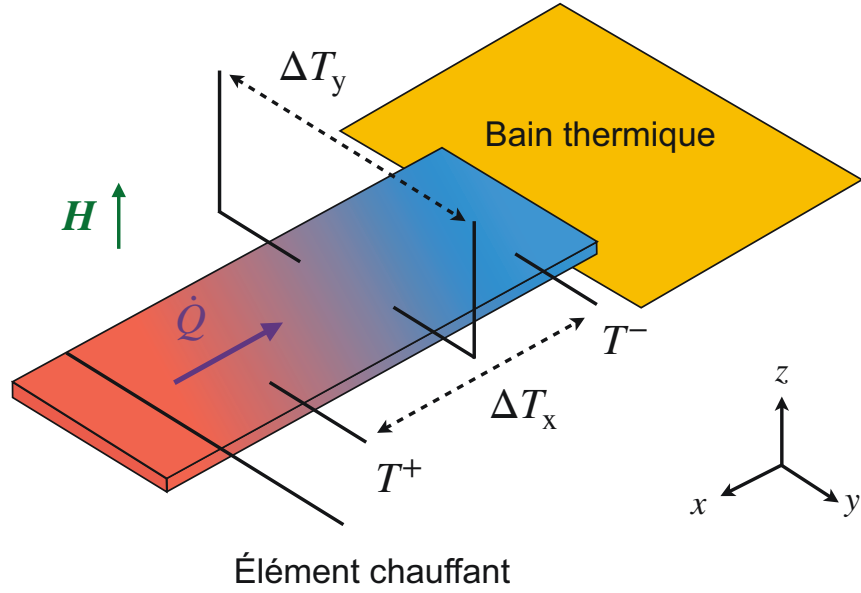


FIGURE 3.3 Schéma théorique d'une mesure de conductivité thermique transverse (effet Hall thermique) κ_{xy} . Le gradient de couleur représente le gradient thermique $\Delta T = T^+ - T^-$ où T^+ et T^- sont respectivement les températures chaude et froide. L'application d'un champ magnétique H perpendiculaire au plan xy de l'échantillon engendre un gradient thermique transverse défini comme ΔT_y . \dot{Q} est le courant de chaleur envoyé dans l'échantillon (rouge : chaud, bleu : froid) (figure adaptée de [42]).

En revenant à la loi de Fourier, le coefficient thermique transverse κ_{xy} devient non nul lorsqu'un champ magnétique externe H perpendiculaire à la direction de l'excitation thermique selon l'axe x :

$$\begin{pmatrix} J_Q^x \\ 0 \end{pmatrix} = - \begin{pmatrix} \kappa_{xx} & \kappa_{xy}(H) \\ -\kappa_{yx}(H) & \kappa_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \frac{\partial T}{\partial x} \\ \frac{\partial T}{\partial y} \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

En présence d'un champ magnétique H , les coefficients transverses sont les mêmes, mais de signe opposé, d'après la relation d'Onsager en champ magnétique, donc $\kappa_{xy}(H) = -\kappa_{yx}(H)$. L'équation 3.9 devient :

$$0 = -\kappa_{yx}(H) \frac{\partial T}{\partial x} + \kappa_{yy} \frac{\partial T}{\partial y} \quad (3.10)$$

De la même façon qu'à l'équation 3.5 :

$$-\frac{\partial T}{\partial x} \simeq \frac{\Delta T_x}{L}, \quad -\frac{\partial T}{\partial y} \simeq \frac{\Delta T_y}{w} \quad (3.11)$$

Ainsi, à l'aide de la relation d'Onsager et des approximations précédentes, la conductivité thermique transverse (ou conductivité thermique de Hall) correspond à :

$$\kappa_{xy} = -\kappa_{yy} \frac{\Delta T_y}{\Delta T_x} \frac{L}{w} \quad (3.12)$$

où $\kappa_{yy} = \kappa_{xx}$ si les axes cristallins a et b du matériau sont indiscernables¹.

3.1.4 Effet Hall thermique d'un métal et d'un isolant

Ici, nous aborderons le concept d'effet Hall thermique en utilisant l'approche classique d'un métal (conducteur). Un effet Hall thermique est possible, puisque les électrons libres se couplent au champ magnétique externe et subissent une force de Lorentz. Les propriétés du transport électronique dans certains métaux nobles tels que le cuivre, l'argent ou l'or sont considérés comme de bons métaux. D'après les équations issues de la théorie du transport de Boltzmann (que nous n'aborderons pas ici), l'effet Hall thermique satisfait la loi de Wiedemann-Franz (WF), qui stipule qu'à $T = 0$, les électrons conduisent de façon identique la charge et la chaleur. Cette loi est donnée par l'équation 3.13.

$$\frac{\kappa_{xy}}{T} = L_0 \sigma_{xy} \quad (3.13)$$

où $L_0 = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 = 2.44 \times 10^{-8} \text{W}\Omega\text{K}^{-2}$ est une constante appelée nombre de Lorenz. Dans la littérature, l'effet Hall thermique a été mesuré notamment dans le potassium [45] et sur le cuivre [46, 47] où dans ce dernier, la loi de WF a été observée. Sur le graphique de la figure 3.4, la loi de WF est tracée en fonction de la température pour le cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_y$ (YBCO) dopé en trous ($p = 0.11$) qui est un métal. Un champ de 27T permet de supprimer la supraconductivité dans l'échantillon et de générer les signaux transverses électrique et thermique et on observe qu'à basse température, la loi de WF est satisfaite.

1. Si $a \neq b$, les mesures de κ_{xx} et κ_{xy} ne peuvent être faites simultanément sur le même échantillon.

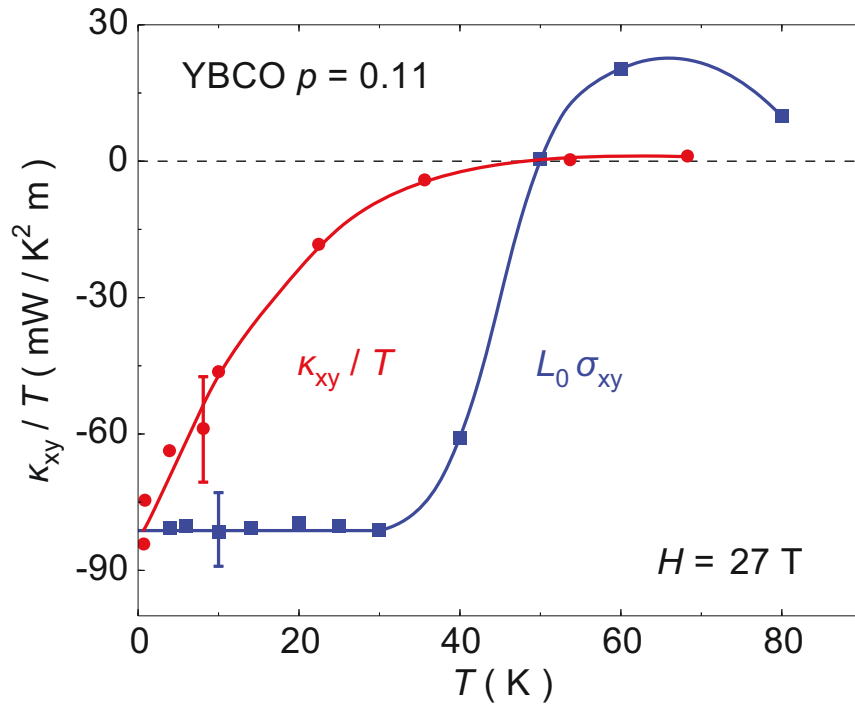


FIGURE 3.4 Graphique de la loi Wiedemann-Franz transverse en fonction de la température de YBCO dopé à $p = 0.11$ pour un champ magnétique de $H = 27\text{ T}$. La courbe rouge correspond au canal thermique tandis que la courbe bleue correspond au canal électrique. La loi de WF est satisfaite dans la limite $T \rightarrow 0$ (figure tirée de [48]).

Maintenant, considérons le cas des matériaux isolants électriques. L'absence de charges libres au sein des matériaux ne permet pas d'observer un signal thermique transverse. De plus, bien que les phonons qui dominent le transport de chaleur soient nombreux, ils sont des quasi-particules électriquement neutres et ne peuvent donc pas se coupler au champ magnétique externe. Pour ces raisons, un effet Hall thermique dans les isolants est, de prime abord, improbable.

Depuis quelques années cependant, des études théoriques se sont penchées sur l'effet Hall thermique dans des matériaux magnétiques isolants tels que des ferroaimants et antiferroaimants dont les magnons, des excitations magnétiques issues des corrélations entre les spins sont les agents d'un signal non-nul [49, 50, 51, 52]. En 2010 et 2012, des études de Onose *et al.* [53] et Ideue *et al.* [54] ont montré qu'un effet Hall thermique important peut émerger de matériaux ferromagnétiques isolants tels que $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ et $\text{In}_2\text{Mn}_2\text{O}_7$ attribuables aux magnons comme illustré sur le graphique de la figure 3.5a.

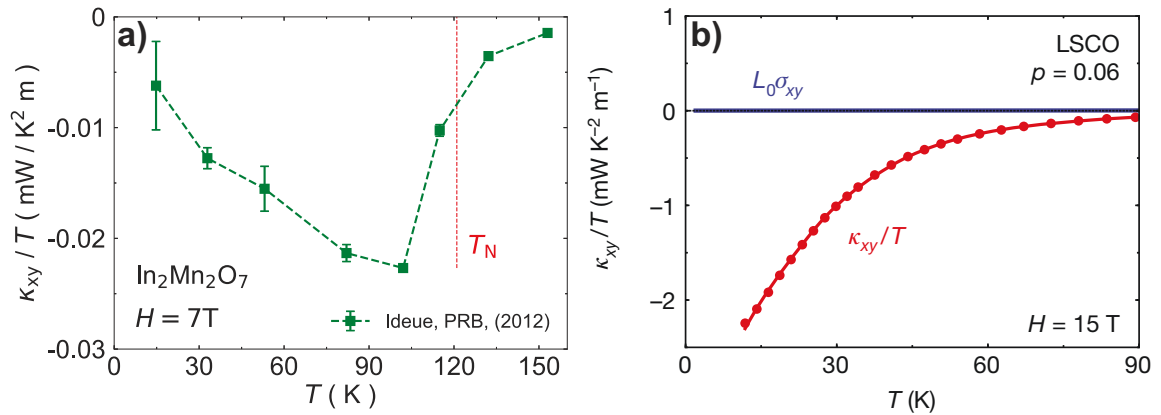


FIGURE 3.5 (a) Graphique de la dépendance en température de κ_{xy}/T à 7T de l'isolant électrique magnétique $\text{In}_2\text{Mn}_2\text{O}_7$ qui est, selon les auteurs de l'étude, attribuable aux magnons (graphique reproduit à partir de [54]). (b) Graphique des transports thermique et électrique dans le cuprate LSCO dopé à $p = 0.06$ pour un champ magnétique de $H = 15\text{T}$. La courbe rouge correspond au canal thermique tandis que la courbe bleue correspond au canal électrique. La loi de WF n'est pas satisfaite dans la limite $T \rightarrow 0$ puisque des quasi-particules électriquement neutres transportent la chaleur de façon transverse. Le canal électrique est pratiquement nul, puisque ce matériau est presque un isolant électrique (figure tirée de [42]).

Plus récemment, un effet Hall thermique géant a été observé dans des cuprates tel que $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ (Nd-LSCO) dans une étude de Grissonnanche *et al.* [42]. LSCO dopé en trous ($p = 0.06$) est un mauvais conducteur électrique et comme le montre le graphique de la figure 3.5b, la loi de WF n'est pas satisfaite à basse température. La contribution électrique (courbe bleue) est pratiquement nulle tandis que des porteurs de chaleurs électriquement neutres génèrent un important effet Hall thermique. La question de la nature de ces porteurs responsables de κ_{xy} demeure ouverte (magnons, quasi-particules exotiques, *etc.*)

Depuis quelques années, l'effet Hall thermique devient une sonde de choix dans l'étude des excitations exotiques dans des matériaux isolants magnétiques tels que les pyrochlores [55, 53], les matériaux *kagomés* [56, 57, 58], les matériaux multiferroïques [59] et les cuprates [42]. D'après les études théoriques [49, 50, 51], l'effet Hall thermique dans différents matériaux isolants provient de la topologie du matériau et non de la force de Lorentz comme dans les métaux.

3.2 Techniques de mesure

3.2.1 Échantillons

Croissance des monocristaux

Les échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ qui ont été mesurés dans ce mémoire proviennent du Laboratoire National de Oak Ridge (*Oak Ridge National Laboratory*) dans l'état du Tennessee aux États-Unis. Les groupes de recherche qui ont fait croître les monocristaux de $\alpha - \text{RuCl}_3$ sont dirigés par les Profs. D. G. Mandrus et S. E. Nagler.

Les monocristaux ont été obtenus à l'aide de la méthode de croissance par transport chimique en phase vapeur (TCV). Initialement, une poudre purifiée à 99.9% de Ru et de Cl a été scellée dans une ampoule de quartz hermétique avec du TeCl_4 comme agent de transport vers le côté chaud de celle-ci [32]. L'agent de transport agit comme un catalyseur afin que la poudre se sublime. Lorsque la température et le temps de refroidissement sont bien réglés, les monocristaux de $\alpha - \text{RuCl}_3$ peuvent se former sur le côté froid de l'ampoule. La technique de TCV est illustrée à la figure 3.6.

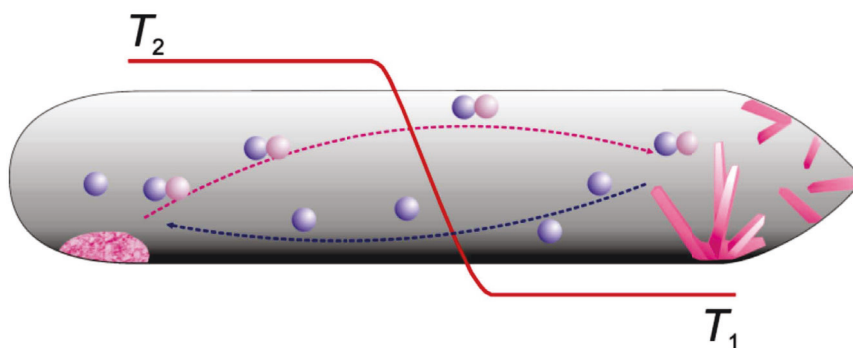


FIGURE 3.6 Schéma de la technique de croissance par transport chimique en phase vapeur où un gradient de température a lieu dans l'ampoule ($T_2 > T_1$), favorisant ainsi la cristallisation des monocristaux désirés. La cristallisation a lieu lorsque la température de l'ampoule est réduite à un certain taux (figure tirée de [60]).

Préparation des échantillons pour les mesures de transport

Les monocristaux de $\alpha - \text{RuCl}_3$ issus de la croissance sont de gros échantillons initiaux (plusieurs centimètres) qui doivent être coupés afin qu'ils adoptent la forme nécessaire pour les mesures de transport (quelques millimètres). Ces cristaux de $\alpha - \text{RuCl}_3$ sont extrêmement fragiles et lamellaires, autrement dit, le cristal présente une multitude de

feuilles de $\alpha - \text{RuCl}_3$ empilées les unes sur les autres. Ce matériau est aussi très friable et mou, il ne se casse pas, il se tord.

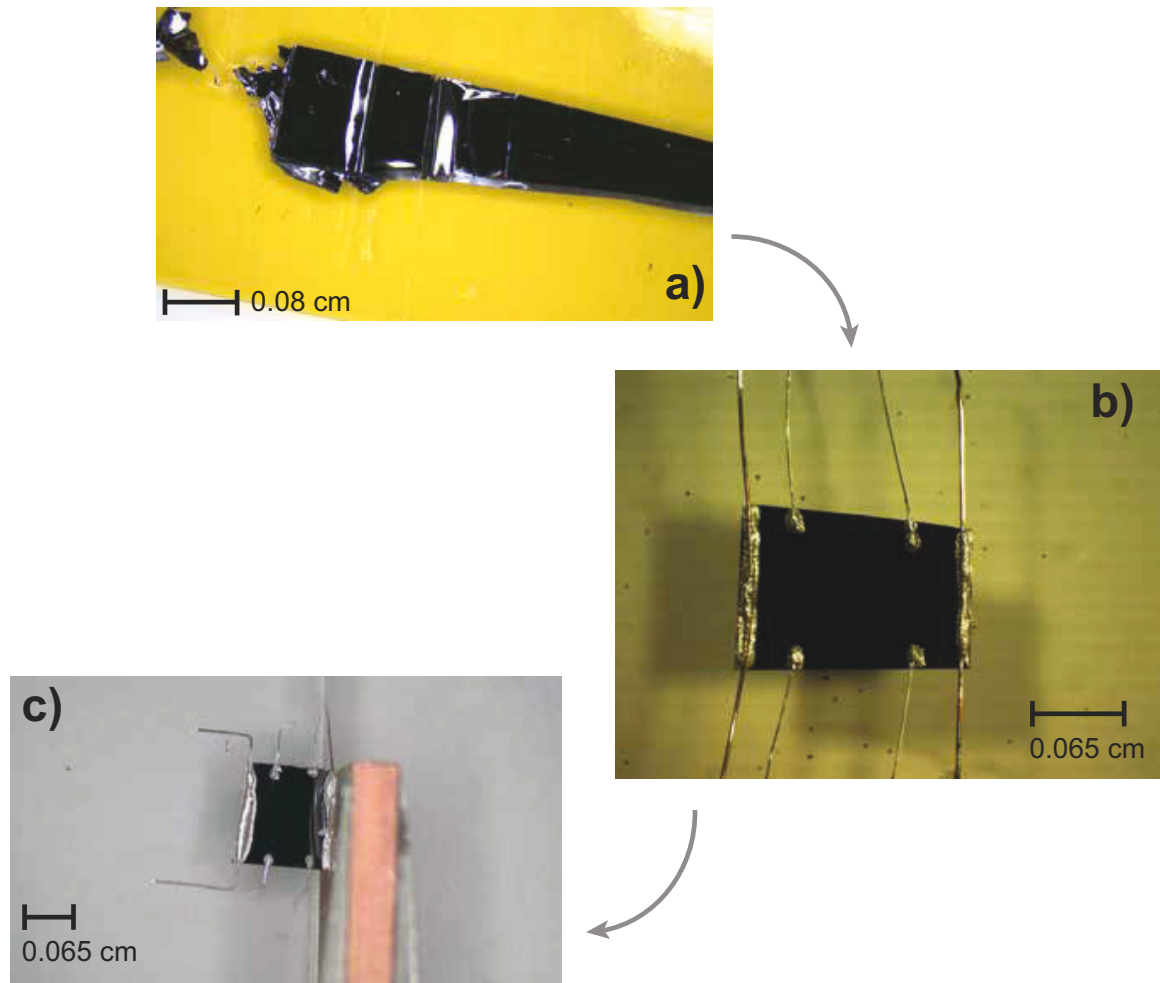


FIGURE 3.7 (a) Échantillon mère de $\alpha - \text{RuCl}_3$ collé sur un morceau de ruban collant. (b) Échantillon de $\alpha - \text{RuCl}_3$ coupé avec des contacts de mesures réalisés avec des fils et de l'*Epoxy* d'argent. (c) Échantillon de $\alpha - \text{RuCl}_3$ collé sur un bloc de cuivre prêt à être mesuré dans le laboratoire.

Pour couper le cristal mère en plusieurs échantillons, il est nécessaire d'utiliser une lame extrêmement fine et aiguisée, ici une lame de rasoir en provenance du Japon. La figure 3.7a montre le cristal mère dont une des faces est collée sur un ruban collant.

Afin d'obtenir des échantillons exploitables et dont les facteurs géométriques optimisent les propriétés de transport, l'épaisseur t d'un échantillon doit être assez faible soit de l'ordre de 0.08mm et la largeur w doit être assez grande soit de l'ordre de 3mm pour maximiser le gradient thermique transverse. L'objectif de l'utilisation du ruban collant est d'exfolier

l'échantillon mère. Le morceau de l'échantillon qui est collé sur le kapton n'étant plus exploitable après l'exfoliation. Seule l'électricité statique entre la face non collée et la table du laboratoire permet une exfoliation de bonne qualité. L'annexe A.1 offre les détails du grand nombre d'échantillons préparés.

La dernière étape de la préparation des échantillons est la pose de contacts comme le montre la figure 3.7b. De l'*Epoxy* d'argent *Epo-Tek* H20E qui permet de coller les fils d'argent de $50\mu\text{m}$ de diamètre (contacts T^+ , T^- et ΔT_y) et de $100\mu\text{m}$ de diamètre pour les contacts de courant de chaleur sur l'échantillon. L'*Epoxy* d'argent est chauffée à 150°C pendant cinq minutes afin de durcir et d'assurer une solidité des contacts. Seul un bon contact thermique est nécessaire, puisque seuls les phonons permettent l'échange de chaleur entre les fils d'argent et l'échantillon isolant électriquement. Sur la figure 3.7c, l'échantillon est collé à un gros bloc de cuivre qui sert de bain thermique avec de la peinture d'argent *DuPont* 4929N.

3.2.2 Montage expérimental et thermométrie

Porte-échantillon

Dans le laboratoire, les échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ sont placés sur un porte-échantillon qui peut accueillir deux échantillons à la fois. Sur chaque montage, les éléments nécessaires aux mesures de \dot{Q} , ΔT_x et ΔT_y sont illustrés sur les figures 3.8a et 3.8b.

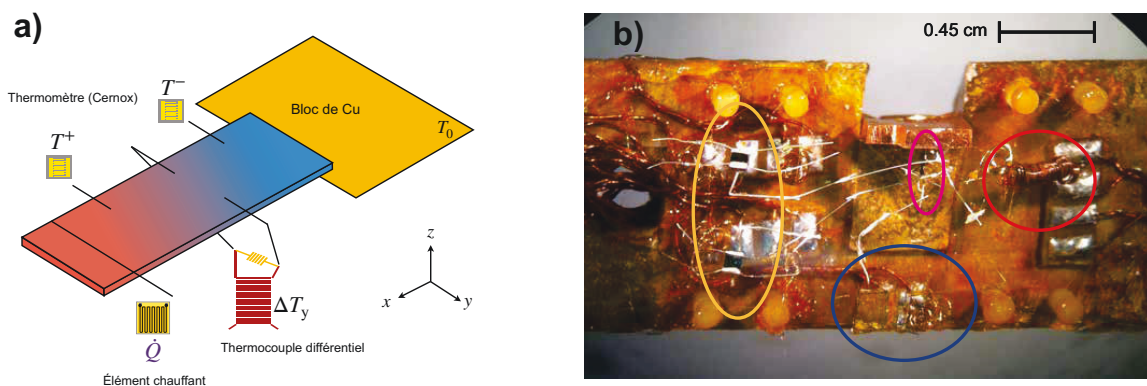


FIGURE 3.8 (a) Schéma des éléments connectés à un échantillon servant à mesurer les conductivités thermiques longitudinale et transverse. Un élément chauffant (\dot{Q}) à l'extrémité chaude, deux thermomètres (*Cernox*) qui mesurent les températures T^+ et T^- et un thermocouple différentiel connecté de part et d'autre de la largeur qui permet de mesurer ΔT_y (figure adaptée de [42]). (b) Image réelle d'un montage sur le porte-échantillon qui met en évidence chaque élément du montage : jaune : *Cernox*, bleu : élément chauffant, magenta : échantillon, rouge : thermocouple différentiel.

Sur ce porte-échantillon se trouvent des thermomètres résistifs qui mesurent T^+ et T^- (des *Cernox* de la marque *Lakeshore*), un thermocouple différentiel de type E qui mesure ΔT_y , l'élément chauffant qui alimente en puissance thermique et l'échantillon lui-même ancré thermiquement sur un gros bloc de cuivre servant de bain thermique (point froid).

La température du porte échantillon, que l'on nomme en général T_0 est régulée par un plus gros élément chauffant et un thermomètre principal calibré en température (une *Cernox*) calibrée en température et se trouvent sous le côté visible du porte-échantillon à la figure 3.8b.

Cernox : ΔT_x , T_{av}

Afin de mesurer le gradient thermique longitudinal ΔT_x , deux thermomètres sont utilisés, chacun mesure T^+ et T^- indépendamment. Ces thermomètres sont des *Cernox*, des matériaux isolants d'oxynitrures dont la résistance électrique en fonction de la température varie grandement dans la limite $T \rightarrow 0$. Ainsi, les *Cernox* sont privilégiées en tant que thermomètres puisque pour des basses températures, un petit changement en température engendre un grand changement de résistance, ce qui offre une précision en température confortable pour ces mesures d'environ 0.5mK.

Les *Cernox* qui mesurent T^+ et T^- ne sont toutefois pas calibrées en température. Il est nécessaire de les calibrer à chaque expérience par rapport à la température de base T_0 du porte-échantillon monitorée en permanence par une *Cernox* principale calibrée. Pour chaque valeur de T_0 , le signal sans chaleur ($\dot{Q} = 0$) (*background*) est soustrait au signal avec chaleur ($\dot{Q} \neq 0$) et la calibration se fait par rapport au *background*, puisque les valeurs sont stables à T_0 .

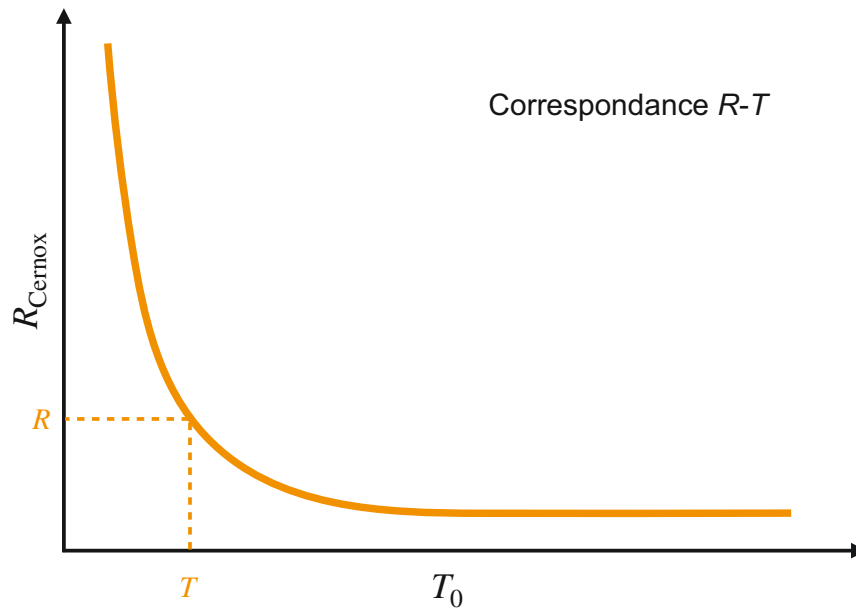


FIGURE 3.9 Graphique imagé de la résistance d'une *Cernox* en fonction de la température de base T_0 . Ce type de courbe sert à calibrer en température les thermomètres sur la température principale, qui est connue.

Afin de mesurer les températures T^+ et T^- (voir la figure 3.8a), on utilise une *Cernox* pour chaque température, une de résistance R^+ et l'autre de résistance R^- .

Lorsque les thermomètres de T^+ et T^- sont calibrés, la température est lue directement afin d'obtenir le gradient thermique longitudinal ΔT_x et la température moyenne de l'échantillon T_{av} :

$$\Delta T_x = T^+ - T^- \quad (3.14) \quad T_{av} = \frac{T^+ + T^-}{2} \quad (3.15)$$

Thermocouple différentiel : ΔT_y

La mesure du gradient thermique transverse ΔT_y se fait à l'aide d'un thermocouple différentiel dont le fonctionnement repose sur l'effet Seebeck (ou le pouvoir thermoélectrique). L'effet Seebeck est un phénomène thermoélectrique pour lequel une différence de tension entre deux points apparaît lorsque ces points sont à des températures différentes. L'effet Seebeck est décrit par l'équation suivante :

$$S = -\frac{|E|}{|\nabla T|} = -\frac{\Delta V}{\Delta T} \quad (3.16)$$

où E est le champ électrique dans lequel évoluent les électrons dans un conducteur et ∇T est le gradient de température. Une différence de tension ΔV est engendrée par le champ électrique et le gradient thermique permet une différence de température ΔT entre deux côtés.

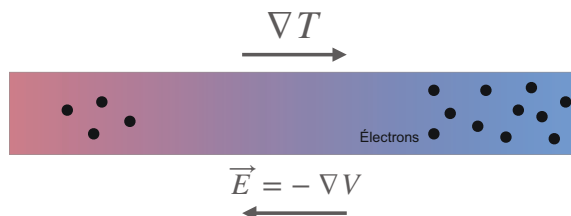


FIGURE 3.10 Illustration de l'effet Seebeck où une densité d'électrons plus importante se trouve du côté froid par rapport au côté chaud.

Lorsqu'un conducteur électrique est soumis à un gradient thermique, les électrons «chauds» ont une vitesse supérieure à celle des électrons «froids». Par diffusion, les électrons ont tendance à se diriger vers la zone froide du conducteur, mais celui-ci constitue un circuit ouvert et donc une accumulation d'électrons se trouve du côté froid. Une force électromotrice s'oppose au mouvement des électrons, ce qui engendre ultimement un champ électrique de sens opposé au gradient thermique. Le coefficient Seebeck est positif lorsque la direction du courant électrique est dans la même direction que celle du courant de chaleur, c'est donc un coefficient de transport sensible au signe des porteurs de charge (*e. g.* électrons ou trous). L'effet Seebeck est schématisé sur la figure 3.10.

En pratique, pour mesurer ΔV_y engendrée par ΔT_y , il ne suffit pas de connecter le voltmètre à chaque extrémité (le long de w) de l'échantillon puisque si c'était le cas, les fils métalliques qui servent pour la mesure seraient à des températures différentes T_1 et T_2 (voir la figure 3.11a). Afin de s'affranchir de cet enjeu, l'utilisation d'un métal différent de celui des fils de mesure (Chr) est soudé par point et mesure la différence de température ΔT_y . De cette façon, le voltmètre (Ct) est à une température connue T_0 tandis que le deuxième métal (Chr) est soumis à ΔT_y .

Maintenant, en connaissant l'évolution en température du pouvoir thermoélectrique (effet Seebeck nommé S) des deux types de métaux (loi de puissance en température donnée par le fabricant), on peut connaître quantitativement le gradient thermique transverse. Le thermocouple de type E qui est fait de constantan Ct² et de chromel Chr³ est utilisé pour cette mesure.

2. Le constantan est un alliage de cuivre 54%, nickel 45%, manganèse 0.75% et fer 0.25%.

3. Le chromel est un alliage de chrome 10% et de nickel 90%.

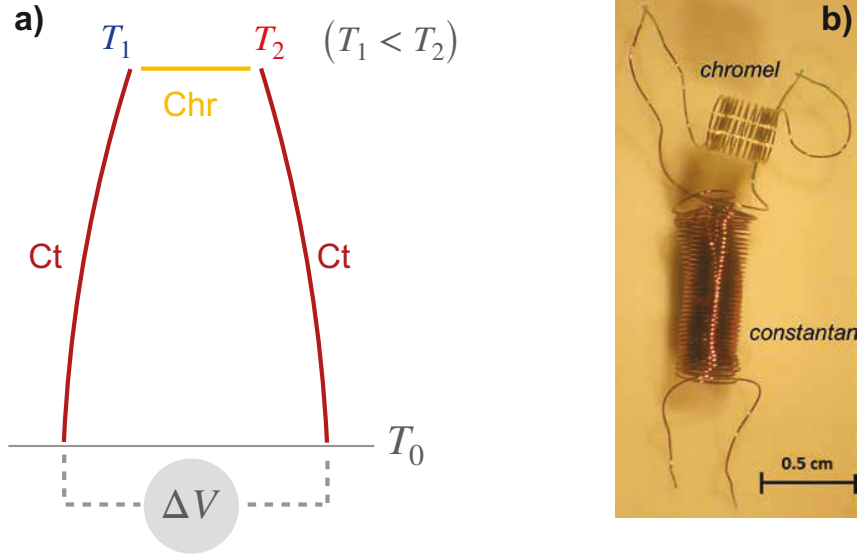


FIGURE 3.11 (a) Schéma d'un thermocouple différentiel de type E. (b) Photo d'un thermocouple différentiel de type E.

Voyons comment les quantités ΔV_y et ΔT_y sont liées par l'effet Seebeck :

$$\Delta V = - \int_{T_0}^{T_1} S_{Ct} dT - \int_{T_1}^{T_2} S_{Chr} dT - \int_{T_2}^{T_0} S_{Ct} dT = (S_{Ct} - S_{Chr}) \Delta T = S_{ther} \Delta T \quad (3.17)$$

où S_{ther} est l'effet Seebeck du thermocouple de type E. Le gradient thermique de Hall correspond donc à $\Delta T_y = \Delta V_y / S_{ther}$. Lors de l'expérience, le thermocouple est connecté thermiquement (et non électriquement) à l'échantillon, mais c'est une différence de tension qui est mesurée puis convertie en température grâce à une table sur le *web* (www.thermocoupleinfo.com).

Afin de pouvoir extraire l'effet Hall thermique, il faut anti-symétriser le gradient transverse ΔT_y :

$$\Delta T_y = \frac{\Delta T_y (+H) - \Delta T_y (-H)}{2} \quad (3.18)$$

en réalisant deux mesures identiques, mais où les directions du champ magnétique sont opposées. De cette façon, la composante longitudinale parasite peut être enlevée. L'existence d'une composante parasite provient du fait que les positions des contacts thermiques de Hall sur les échantillons ne sont pas parfaitement symétriques l'une par rapport à l'autre.

Élément chauffant \dot{Q}

L'élément chauffant que nous utilisons est une jauge de contrainte, est un méandre métallique très résistif de $5\text{k}\Omega$ à température ambiante. Nous utilisons cela, car la résistance de la jauge est indépendante de la température et du champ magnétique. Un courant électrique I connu est envoyé dans la résistance et par effet Joule (équation 3.19), le courant électrique est transformé en courant de chaleur.

$$\dot{Q} = RI^2 \quad (3.19)$$

où R est la résistance de la jauge de contrainte. Il est crucial de connaître la quantité de chaleur qui est envoyée dans l'échantillon, puisqu'elle sert à générer ΔT_x et à calculer κ_{xx} et κ_{xy} . La jauge de contrainte est liée à l'échantillon par un fil d'argent et la plupart de la chaleur dissipée par celle-ci est injectée à l'échantillon, puisque l'environnement est sous vide ($\simeq 10^{-7}\text{mbar}$).

Le contrôle et la régulation de la température de base T_0 se font à l'aide d'un thermomètre *Cernox* principal et d'un élément chauffant principal (également une jauge de contrainte) qui sont directement installés sur le porte-échantillon (on ne les voit pas sur la figure 3.8b) afin que l'ancrage thermique soit le meilleur possible. La *Cernox* principale est calibrée en température et la jauge de contrainte offre une résistance de 120Ω à température ambiante.

La *Cernox* principale sert à lire la température de base T_0 tandis que la jauge de contrainte principale sert à chauffer plus ou moins fort le porte-échantillon afin que la température demandée soit le mieux possible régulée et stable.

Cette régulation de la température de base est dictée par des paramètres d'optimisation nommés *PID* (Proportionnel-Intégral-Dérivé) qui permettent d'atteindre une température et de la maintenir dans le temps, en l'occurrence T_0 .

De plus, une mesure d'effet Hall thermique est une mesure de transport difficile à réaliser, parce qu'elle requiert une extrême stabilité de la température de la sonde T_0 en fonction du temps. La raison repose sur le fait que souvent, un gradient ΔT_x de 1K peut être produit à $T_{av} = 5\text{K}$ tandis que dans le canal transverse, un gradient ΔT_y de 1mK peut être généré, de l'ordre du bruit en température; le bruit de mesure peut donc facilement être confondu avec le réel gradient transverse. Typiquement, le signal transverse est de deux à trois ordres de grandeur inférieur au signal longitudinal.

3.2.3 Instrumentation

Tout au long de ce mémoire, une sonde conçue par plusieurs membres du groupe de recherche Taillefer il y a quelques années a été utilisée et est illustrée sur la figure 3.12a. Cette sonde longue d'environ 2m joint le haut qui reçoit toutes les connections électriques avec le porte-échantillon en bas, par l'intermédiaire d'une tige fine d'acier inoxydable creuse. Cette tige sert de ligne de pompage afin que les échantillons soient constamment sous vide et que la chaleur se rende en entier dans celui-ci (voir la thèse de Gaël Grissonnanche pour davantage de détail [41]).

L'appareillage permettant de mesurer les propriétés de transport sur $\alpha - \text{RuCl}_3$ est également illustré sur la figure 3.12b et une description plus exhaustive de la fonction de chaque appareil apparaît sur le tableau 3.2.

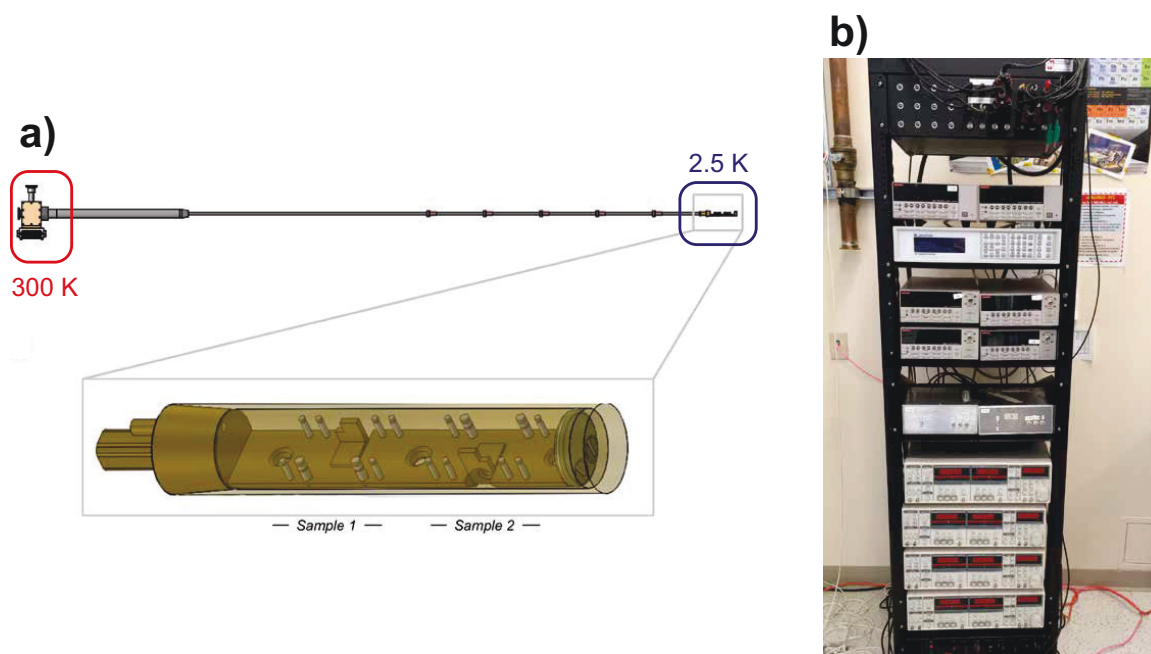


FIGURE 3.12 (a) Schéma de la sonde utilisée dans ce mémoire qui a permis de mesurer les propriétés de transport thermique sur les échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$. La «tête» de la sonde est à 300K et reçoit les connections électriques en cuivre qui proviennent des fils électriques des préamplificateurs (voir le tableau 3.2). Le porte-échantillon est à 1.5K et est placé à l'intérieur de l'aimant supraconducteur (solénoïde) ; un schéma du porte-échantillon agrandi permet de noter que deux échantillons sont mesurés au cours d'une même expérience. Les tiges cylindriques sont faites en résine et permettent de découpler thermiquement les éléments du montage par rapport au porte-échantillon. Finalement, un cylindre en laiton agit comme paroi contre les radiations et couvre tout le porte-échantillon. (b) Image de l'appareillage nécessaire aux mesures de transport thermique : (du haut vers le bas) des sources de courant *Keithley* 6221, un contrôleur de température *Lake Shore Cryotronics* 340, des nano voltmètres *Keithley* 2182A, des préamplificateurs maison et des amplificateurs synchrones *Lock-In* SR830.

| Composantes du porte-échantillons | Appareils de mesure | Fonctions |
|--|---|---|
| <i>Cernox</i> T^+ et T^- | Amplificateur synchrone <i>Lock-In</i> SR830 | Mesure simultanément les tensions aux bornes des deux thermomètres |
| Thermocouple différentiel de type E ΔT_y | Nanovoltmètre <i>Keithley</i> 2182A & préamplificateur maison | Le préamplificateur maison multiplie par un gain de 1000 la tension du thermocouple et le nano voltmètre mesure cette tension |
| Jauge de contrainte de $5k\Omega$ de l'échantillon \dot{Q} | Source de courant <i>Keithley</i> 6221 | Génère un courant DC dans la jauge de contrainte de façon à transformer une excitation électrique en excitation thermique |
| <i>Cernox</i> principale calibrée du porte-échantillon T_0 | Contrôleur de température <i>Lake Shore Cryotronics</i> 340 | Mesure la résistance de la <i>Cernox</i> principale et affiche la température de base T_0 (à l'aide d'une table de calibration) |
| Jauge de contrainte principale de 120Ω du porte-échantillon | Contrôleur de température <i>Lake Shore Cryotronics</i> 340 | Génère un courant dans la jauge de contrainte principale afin d'ajuster la température de base T_0 |

TABLE 3.2 Tableau des instruments de mesure utilisés ainsi que leur fonction. Hormis la lecture de la température de base T_0 qui est lue directement en Kelvins, les autres quantités sont mesurées en Volts.

L'appareil cryogénique qui a permis toutes les manipulations expérimentales est un *Variable Temperature Insert* (VTI) et consiste en une chambre dans laquelle est insérée la sonde. Le VTI est muni d'un élément chauffant et d'une valve pointeau dont la fonction est de laisser plus ou moins passer de l'hélium gazeux. Cet appareil sert à offrir à la sonde un pouvoir de refroidissement et permet d'atteindre des températures comprises entre 1.5K et 300K (l'appareil est illustré à la figure 3.13a).



FIGURE 3.13 (a) Photo du VTI utilisé dans ce mémoire. (b) Photo du cryostat dans lequel se trouve un aimant supraconducteur de 15T et dans lequel le VTI est inséré.

En plus du VTI, le cryostat dans lequel baigne l'hélium liquide possède une bobine supraconductrice qui permet de générer un champ magnétique de 15T (le cryostat est illustré à la figure 3.13b, mais la bobine n'est pas visible, puisqu'elle se trouve tout au fond de celui-ci).

Pour une description plus élaborée du fonctionnement du VTI, consulter la thèse de Gaël Grissonnanche [41].

3.2.4 Difficultés expérimentales

Stabilité en température

Les mesures d'effet Hall thermique sont difficiles à réaliser puisque le signal thermique transverse ΔT_y recherché est souvent très faible et se trouve être dans la limite signal-sur-bruit mesurable expérimentalement aujourd'hui. En effet, le succès d'une mesure de κ_{xy} passe tout d'abord par une bonne stabilité de la température principale T_0 , c'est-à-dire la température du porte-échantillon lui-même. Sur le graphique de la figure 3.14a, T_0 est maintenue à 2.5K sur une certaine période de temps.

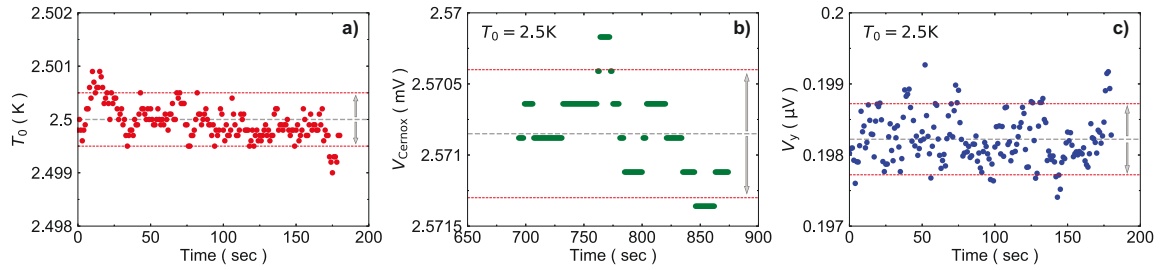


FIGURE 3.14 (a) Graphique de la température principale en fonction du temps. La résolution de la mesure de T_0 est d'environ 0.5mK. (b) Graphique du voltage des thermomètres (*Cernox*) en fonction du temps. La résolution de la mesure de V_{Cernox} est d'environ 0.5 μ V. (c) Graphique du voltage transverse V_y à 2.5K en fonction du temps. La résolution de la mesure du voltage avec le thermocouple différentiel de type E est d'environ 1nV.

Le bruit associé à la mesure de T_0 est typiquement autour de 0.5mK. Cette stabilité du porte-échantillon est cruciale, car les éléments du montage tels que les *Cernox* et les thermocouples différentiels répondraient à une instabilité de T_0 , ce qui engendrerait ultimement une mauvaise lecture des tensions sur les échantillons.

Sur le graphique de la figure 3.14b, le voltage des thermomètres en fonction du temps montre une bonne stabilité ainsi qu'un très faible niveau de bruit. En effet, le bruit est tel qu'il montre la digitalisation de la lecture de l'appareil de mesure.

Ensuite, sur le graphique de la figure 3.14c, toujours à $T_0 = 2.5\text{K}$, le voltage en fonction du temps que lit le thermocouple différentiel connecté à un échantillon est précis à 1nV près. Typiquement, à $T_0 = 3\text{K}$, $\Delta V_y \simeq 2\text{nV}$ et donne un $\Delta T_y \simeq 1\text{mK}$ une fois convertit en température (voir la sous-section 3.2.2). Les signaux mesurés peuvent être très faibles donc une bonne stabilité en température doit être acquise. Cependant, typiquement, le signal-sur-bruit augmente avec la température pour des thermocouples, donc le signal est davantage facile à résoudre plus la température est élevée.

Couple magnétique sur les échantillons

La sous-section 3.2.1 traite de la préparation des échantillons et la technique d'exfoliation est utilisée afin de contrôler l'épaisseur des échantillons. Sur la figure 3.15a, la photographie met en évidence d'exfoliation d'un échantillon à l'aide d'un ruban adhésif. $\alpha - \text{RuCl}_3$ est un matériau résistant lorsqu'on considère les plans (les feuilles sont très flexibles), mais si on considère la direction selon l'empilement de ceux-ci, il est très facile de les séparer (d'exfolier).

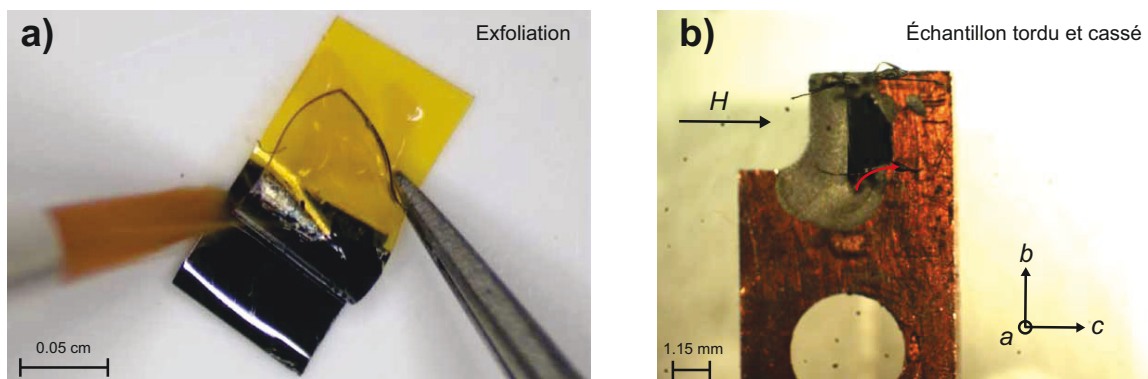


FIGURE 3.15 (a) Photographie du processus d'exfoliation d'un échantillon dont les dimensions ont été ajustées pour la mesure d'effet Hall thermique. Seul un pinceau peut être en contact avec les échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et la pince sert à tirer le ruban adhésif. (b) Échantillon de $\alpha - \text{RuCl}_3$ collé sur un bloc de cuivre qui a subi un couple magnétique. L'échantillon est complètement tordu et est cassé à la base.

Il s'avère cependant que certains échantillons subissent un violent couple magnétique lorsque le champ magnétique qui leur est appliqué change. Lors d'une mesure de κ_{xy} , la direction du champ magnétique est toujours changée à des températures avoisinant 100K, afin que les échantillons ne soient pas bougés par un effet de couple magnétique sur un ordre magnétique ($\alpha - \text{RuCl}_3$ est un para-aimant à 100K). Malgré cette précaution, certains échantillons ont été tordus voire cassés par ce couple comme le montre la figure 3.15b. Bien qu'observé par l'ensemble des groupes de recherche étudiant ce matériau, ce couple reste à ce jour inexpliqué. Cet effet pourrait être causé par la présence d'impuretés magnétiques dans les cristaux, mais cela n'est à ce jour pas démontré. Ces impuretés pourraient être issues de la technique de croissance.

Cyclage thermique

Comme mentionné à la sous-section 3.2.1, les plans de $\alpha - \text{RuCl}_3$ sont peu couplés entre eux et donc les échantillons sont très lamellaires. Lors des mesures d'effet Hall thermique, des enjeux d'irreproductibilité ont été rencontrés comme le graphique de la figure 3.16a le montre bien. Une différence significative est observable entre les deux courbes de κ_{xy} , pourtant, les deux courbes ont été prises dans les mêmes conditions.

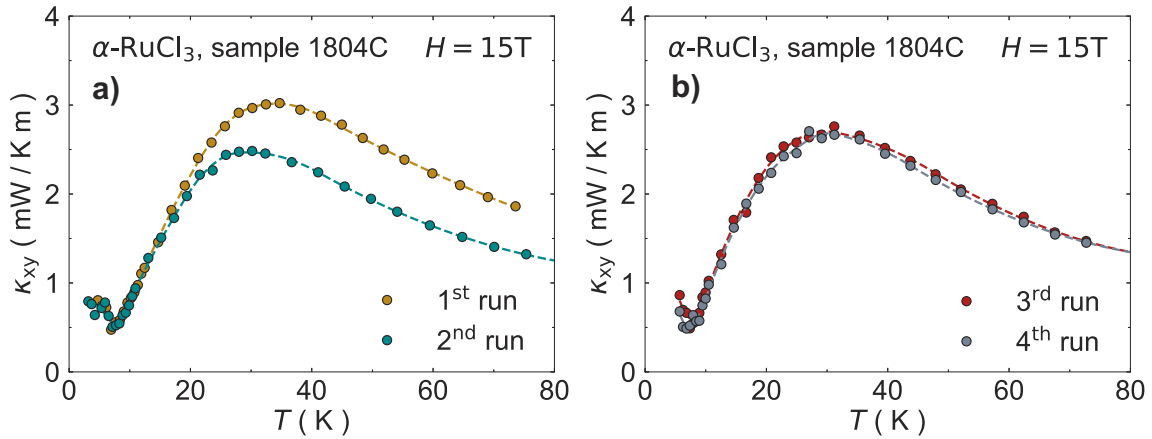


FIGURE 3.16 (a) Graphique de κ_{xy} en fonction de T à 15T de l'échantillon 1804C pour deux mesures distinctes. Malgré les conditions expérimentales identiques, une différence est observable due au cyclage thermique (le passage de 2K à 100K pendant la mesure). (b) Graphique de κ_{xy} en fonction de T à 15T de l'échantillon 1804C pour deux mesures distinctes. Les conditions expérimentales sont les mêmes, mais les mesures ont été faites à l'aide d'une routine de paliers en température (voir le texte plus bas). *Note* : les traits pointillés sont des guides pour l'oeil.

L'hypothèse pouvant expliquer une telle différence est que les plans de $\alpha - \text{RuCl}_3$ qui composent l'échantillon réagissent fortement au cyclage thermique (le passage de 2K à 100K pendant la mesure) et que les plans de $\alpha - \text{RuCl}_3$ bougent significativement entre eux lorsque la température est changée (dans un échantillon typique, le nombre de plans est estimé entre 100'000 et 200'000). Afin de contourner le problème d'irreproductibilité, les mesures ont été effectuées selon plusieurs plus petits paliers de températures pour éviter de grosses variations thermiques pour l'échantillon.

→ **1^{er} palier** : Mesure entre 2.5K et 15K à $\pm 15\text{T}$

→ **2^e palier** : Mesure entre 16K et 45K à $\pm 15\text{T}$

→ **3^e palier** : Mesure entre 46K et 90K à $\pm 15\text{T}$

En appliquant cette séquence, les mesures sont reproductibles, comme illustré sur le graphique de la figure 3.16b où les deux courbes se superposent.

Background asymétrique en champ magnétique

Une façon de limiter l'effet nuisible des cyclages thermiques serait de faire des balayages en champ magnétique plutôt qu'en température. Les échantillons seraient donc stables en

température (c'est-à-dire pour une température de base T_0 fixée) et seul le champ varierait en fonction du temps.

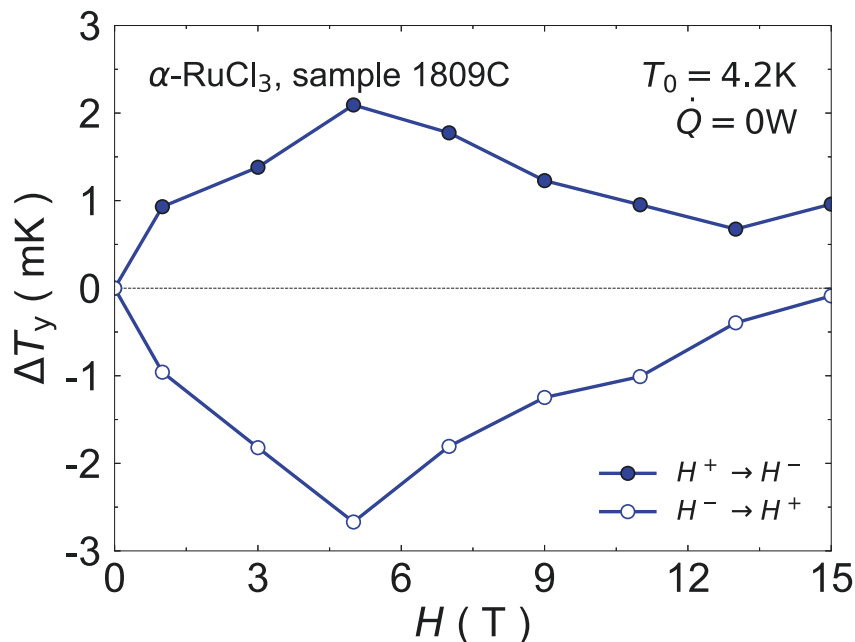


FIGURE 3.17 Graphique de la dépendance en champ magnétique du *background* de ΔT_y à $T_0 = 4.2\text{K}$ dans l'échantillon 1809C. Le *background* correspond à la mesure du gradient lorsqu'aucune chaleur ($\dot{Q} = 0\text{W}$) n'est appliquée sur l'échantillon. Deux directions différentes de balayage de H sont affichées.

Il s'avère cependant qu'au cours de la maîtrise, un signal parasite a été détecté lorsque les mesures étaient effectuées sur $\alpha - \text{RuCl}_3$. Ce signal parasite consiste en une contibution non-désirée au gradient thermique transverse ΔT_y lorsque le champ magnétique est balayé, comme illustré sur le graphique de la figure 3.17. Ce problème survient seulement lorsque le champ est balayé, puisque le *background* (c'est-à-dire le signal lorsqu'aucune chaleur est appliquée sur les échantillons) n'est pas soustrait au réel signal⁴. Normalement, le *background* devrait être nul en fonction du champ magnétique; il ne l'est pourtant pas. Ce *background* contamine significativement le vrai ΔT_y de l'ordre de $\simeq 2\text{mK}$, ce qui correspond à la valeur du signal qui doit être résolu à 5K . L'origine de ce problème est de mieux en mieux compris dans le groupe de recherche Taillefer et cet enjeu consiste d'ailleurs un des volets de mon doctorat.

4. Lors d'une mesure de κ_{xy} en fonction de la température, le *background* est systématiquement soustrait à chaque température de base T_0 , ce qui n'affecte d'aucune façon les résultats.

Chapitre 4

Mesures de transport thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$

Ce chapitre est consacré aux résultats expérimentaux de l'étude du transport de chaleur dans les échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ qui ont été crus par le groupe du Prof. D. G. Mandrus. L'objectif de ce mémoire est d'effectuer d'abord un travail de caractérisation de ces échantillons et ensuite un travail d'exploration du transport thermique de Hall dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ qui a fait jusqu'ici l'objet de peu d'études.

4.1 Conductivité thermique κ_{xx}

Commençons d'abord par les mesures de conductivité thermique κ_{xx} sur $\alpha - \text{RuCl}_3$. Sur le graphique de la figure 4.1, est mise en évidence κ_{xx} en fonction de la température pour l'échantillon Z0326z (voir l'annexe A.1) qui représente une courbe typique du transport de chaleur longitudinal dominé par les phonons dans ce matériau. Comme mentionné au chapitre 2, le matériau s'ordonne à basse température et la transition vers l'ordre AFM peut être observé à $T_N \simeq 7\text{K}$ qui est indiquée en rouge. La courbe respecte le comportement attendu dans un isolant électrique (voir la figure 3.2) où un large pic de conductivité des phonons peut être observé à environ 45K. Cette sonde de transport est sensible à la nature des porteurs ainsi qu'aux processus de diffusions, d'où l'observation d'une remontée de la conductivité thermique sous T_N . En effet, sous T_N , les fluctuations de spins qui diffusent grandement les porteurs de chaleur (phonons et/ou magnons) à haute température, se trouvent à être alors gappées avec l'établissement de l'ordre magnétique et le libre parcours moyen des porteurs de chaleur augmente, et donc augmente aussi κ_{xx} . Il est difficile de

connaître quelles sont les contributions respectives à κ_{xx} provenant des phonons et des magnons.

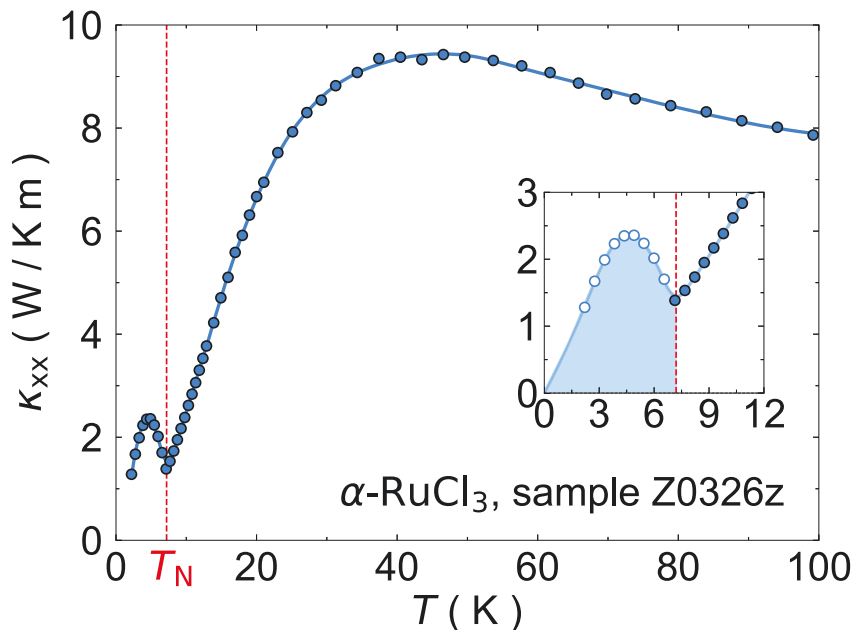


FIGURE 4.1 Graphique de la conductivité thermique κ_{xx} en fonction de la température T pour l'échantillon Z0326z de $\alpha - \text{RuCl}_3$. Le sous-graphique met en évidence la conductivité thermique sous T_N où une remontée de κ_{xx} suggère que des excitations de spins inhérentes à la phase AFM diffusent moins les phonons. *Note* : le trait plein bleu pâle est un guide pour l'oeil.

La conductivité thermique κ_{xx} est un bon indicateur de la qualité d'un échantillon, et cela est tout particulièrement vrai pour $\alpha - \text{RuCl}_3$. En effet, la hauteur du pic de conductivité des phonons permet de savoir si un échantillon est plus ou moins conducteur de chaleur, et donc de plus ou moins bonne qualité ; les impuretés présentes diffusent davantage les phonons, ce qui réduit leur capacité de transporter l'énergie thermique surtout à T_{pic} (voir la figure 3.2a). Le graphique de la figure 4.2 met en évidence la conductivité thermique en fonction de la température des échantillons 1804A, 1804C et 1804D (voir l'annexe A.1). Ces trois échantillons proviennent d'un même échantillon-mère (voir la figure 3.7), c'est-à-dire des échantillons de puretés égales. Pourtant, on observe une grande disparité entre les différents échantillons. Cette variation de l'amplitude dans la conductivité thermique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ est attribuée aux défauts d'empilement des plans, ceux-ci étant générés lors de la manipulation des échantillons de quelque manière que ce soit. Cela met en lumière la difficulté de mesurer ce matériau. Il est à noter que la variation de la conductivité thermique d'un échantillon à l'autre est grandement supérieure à l'erreur faite sur la mesure qui

provient majoritairement de l'incertitude sur les facteurs géométriques.

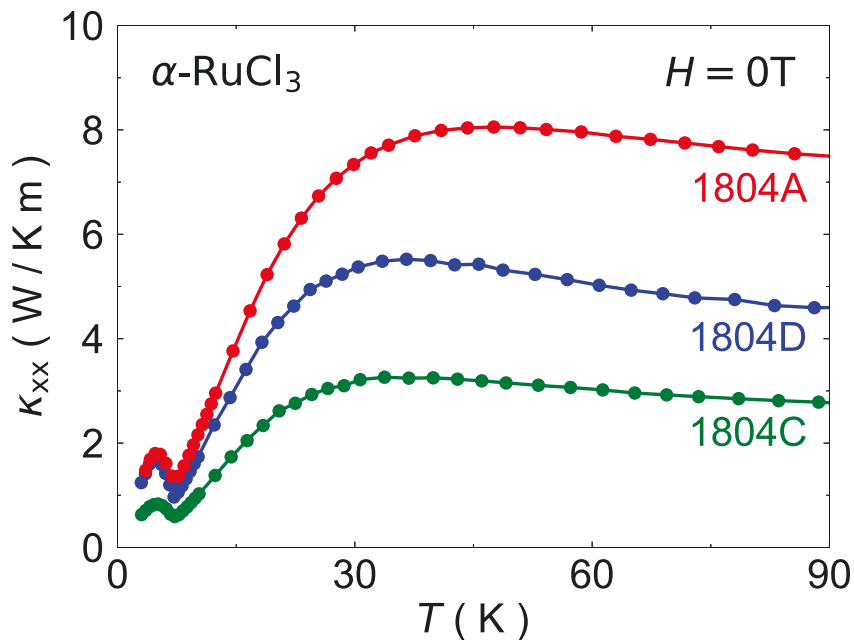


FIGURE 4.2 Graphique de la conductivité thermique κ_{xx} à $H = 0\text{T}$ en fonction de la température T des échantillons 1804A, 1804C et 1804D de $\alpha - \text{RuCl}_3$, tous préparés à partir du même échantillon-mère.

Bien qu'une importante variation de κ_{xx} soit observée parmi les échantillons, la transition AFM demeure toujours visible et à la même température T_N , ce qui garantit tout de même la qualité des échantillons. En effet, la transition à 7K est amenée à disparaître et à être remplacée par une transition à 14K dans les échantillons de piètre qualité [16, 61, 62]. On peut également comparer la conductivité thermique des échantillons mesurés à Sherbrooke à celles issues de la littérature, comme cela est fait en figure 4.3.

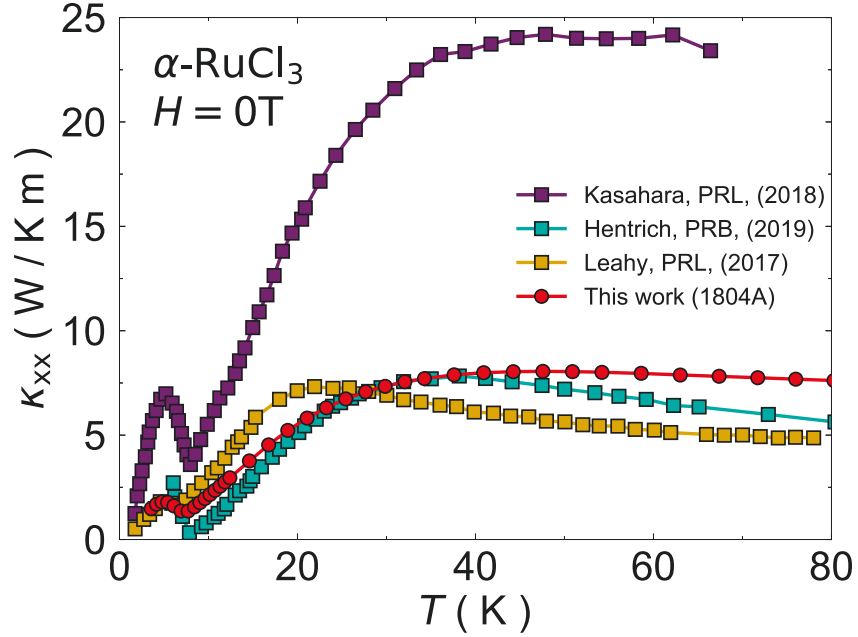


FIGURE 4.3 Graphique de la conductivité thermique κ_{xx} à $H = 0\text{T}$ en fonction de la température T pour $\alpha\text{-RuCl}_3$ qui compare les études [40, 38, 39] et l'échantillon 1804A mesuré à Sherbrooke.

Les données de Sherbrooke (cercles rouges) sont en accord qualitatif avec les études de Hentrich *et al.* [38] menée par le groupe du Dr. Hess (*Leibniz Institute for Solid State and Materials Research*, Dresde, Allemagne) ainsi que de Leahy *et al.* [39] menée par le groupe du Pr. Lee (Université du Colorado, Boulder, USA), en terme d'amplitude, mais l'étude de Kasahara *et al.* [40] menée par le groupe du Pr. Matsuda (Université de Kyoto, Kyoto, Japon) observe une amplitude trois fois supérieure aux précédentes études. Les auteurs de cette dernière étude prétendent que le très grand κ_{xx} est expliqué par l'importante qualité de leurs échantillons. Ils sont aujourd'hui les seuls au monde à observer une telle qualité. Les auteurs de cette étude sont d'ailleurs les mêmes qui ont observé la quantification de l'effet Hall thermique [5]. Néanmoins, leur courbe d'aimantation sur le graphique de la figure 4.4a montre une bosse à 14K, ce qui permet de douter de leur affirmation en lien avec la qualité des échantillons qu'ils ont mesurés.

Les graphiques de la figure 4.4a et 4.4b mettent respectivement en évidence l'aimantation M en fonction de la température et la conductivité thermique en fonction de la température pour les quatre échantillons mesurés à Sherbrooke (Z0323z, 1804A, 1804C et 1804D) et pour l'étude de Kasahara *et al.* [40]. D'abord, les mesures d'aimantation montrent une anomalie à 14K pour les échantillons 1804D et 1804E tandis que dans les échantillons 1804C et Z0326z,

aucun signe de T_{N2} est observable. Bien que les auteurs de Kasahara *et al.* mentionnent une grande conductivité thermique corrélée à une grande pureté des monocristaux, l'aimantation de l'échantillon qui présente la plus importante conductivité thermique rapportée dans la littérature montre une importante anomalie à 14K. Tandis que L'échantillon Z0326z ne présente aucune anomalie mais une conductivité thermique trois fois inférieure à celle de l'étude de Kasahara *et al.*, l'échantillon 1804C ne montre pas d'anomalie non plus, mais affiche une des plus faibles conductivités thermiques reportées dans la littérature. On déduit de l'étude de Kasahara *et al.* et celle de Sherbrooke qu'il n'y a apparemment pas d'équivalence directe entre anomalie à 14K dans l'aimantation et l'amplitude de la conductivité thermique. Autrement dit, la qualité (ou pureté) des échantillons n'est pas uniquement basée sur les défauts d'empilement; la technique de croissance utilisée pourrait potentiellement induire des défauts cristallins telles des impuretés magnétiques par exemple qui ne seraient pas nécessairement induits par la manipulation en laboratoire des échantillons (comme expliqué dans la sous-section 3.2.1).

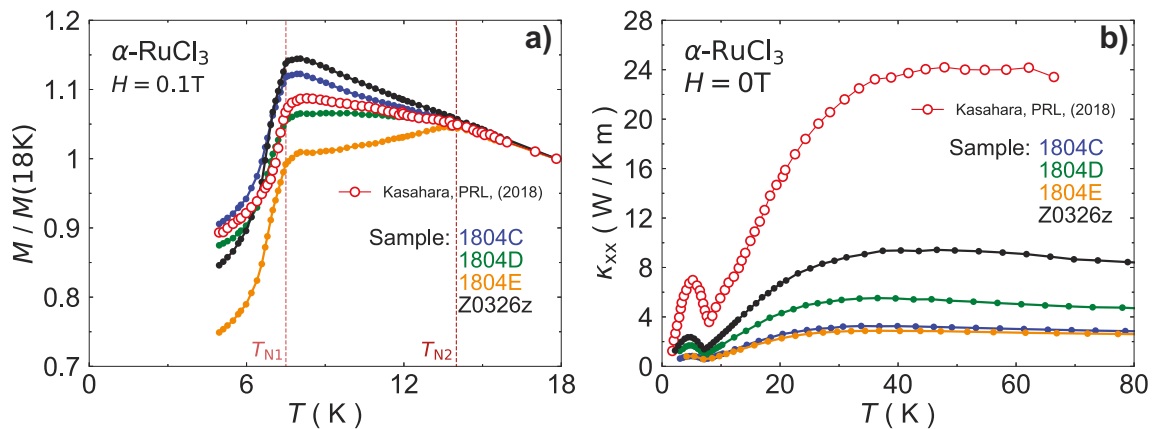


FIGURE 4.4 (a) Graphique de l'aimantation normalisée en fonction de la température des échantillons 1804C, 1804C, 1804D et Z0326z. Les traits pointillés à T_{N1} et T_{N2} correspondent respectivement à l'ordre AFM et à la signature des défauts d'empilement à 14K. (b) Graphique de la conductivité thermique en fonction de la température des échantillons 1804C, 1804C, 1804D et Z0326z. Les cercles ouverts blancs correspondent à des données de chaleurs spécifique C et de conductivité thermique κ_{xx} provenant de l'étude [40].

En observant le graphique de la figure 4.5, la conductivité thermique en fonction de la température montre un facteur 2 entre la courbe de l'étude du groupe japonais et l'étude de Sherbrooke pour l'échantillon 1810B. Cet échantillon est dit *as grown* puisqu'il n'a pas été coupé ni exfolié (il est intact) et seuls les contacts ont été mis. Bien que l'amplitude de κ_{xx} à 40K est environ deux fois supérieure à celle de l'échantillon 1804D qui a été coupé et exfolié, l'échantillon 1810B ne présente tout de même pas une amplitude de près de 25W/Km

comme l'ont mesuré les auteurs de Kasahara *et al.* Cette comparaison souligne le fait que le nombre limité au maximum de défauts d'empilement des échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ n'est pas responsable d'un signal comparable à celui de l'étude japonaise. Ainsi, l'hypothèse que les défauts d'empilement seraient essentiellement induits lors de la manutention, la taille et l'exfoliation des échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ semble être corroborée au sein de notre étude à Sherbrooke ainsi qu'avec la littérature, mais est irréconciliable, en terme d'amplitude, avec celle du Prof. Matsuda [40].

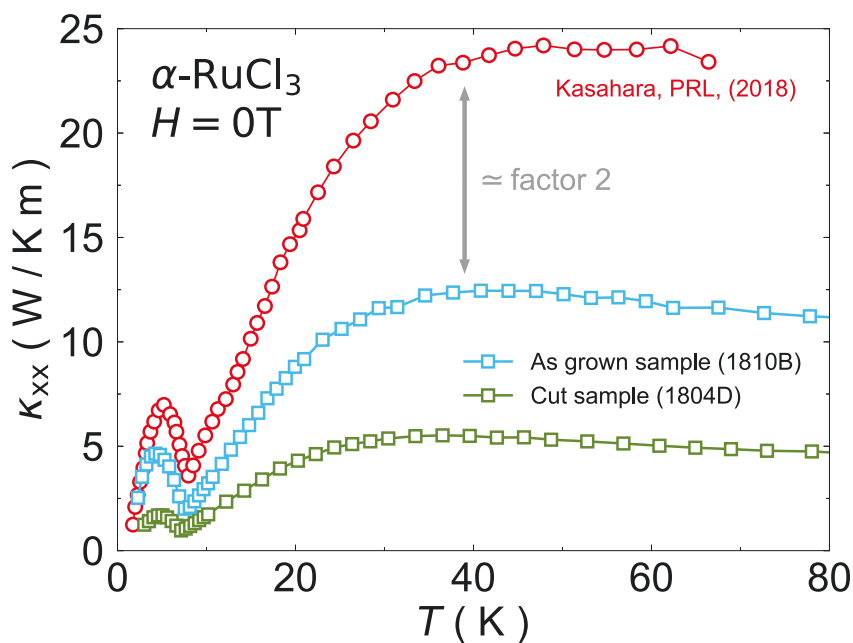


FIGURE 4.5 Graphique de la conductivité thermique en fonction de la température des échantillons 1804D qui a été coupé et exfolié, 1810B qui est intact (*as grown*) et de l'étude provenant de Kasahara *et al.* [40]. Une amplitude environ deux fois supérieure à celle de l'échantillon 1804D est observée pour l'échantillon 1810B et l'amplitude de la courbe rouge est environ deux à quatre fois supérieure à celle de toutes les courbes observées.

Une hypothèse a été proposée par Cao *et al.* [16] reliant le type d'empilement des plans de $\alpha - \text{RuCl}_3$ selon l'axe c et l'observation de l'anomalie à 14K. Dans un cas où on considérerait un cristal quasi-parfait de $\alpha - \text{RuCl}_3$, l'empilement serait de type ABC comme illustré sur la figure 4.6a, où chaque plan est décalé d'une distance $a/3$ par rapport au plan adjacent, jusqu'à ce que la séquence ABC se poursuive de nouveau.

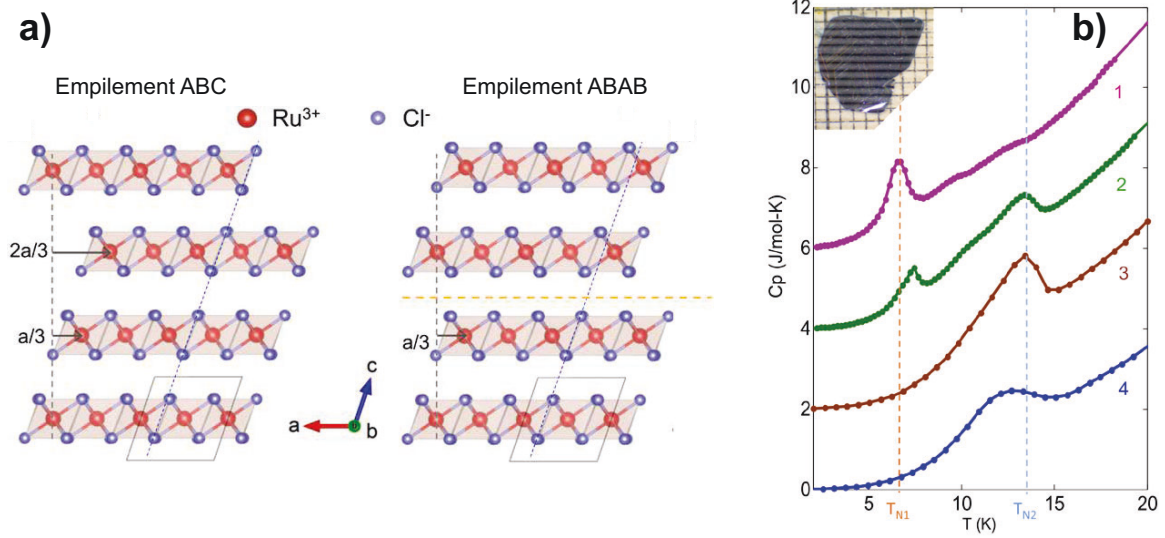


FIGURE 4.6 (a) Schémas des types d'empilements possibles dans α - RuCl_3 ; empilement ABC et ABAB où les plans selon l'axe c sont décalés de $a/3$ ou de $2a/3$. (b) Chaleur spécifique à $H = 0\text{T}$ en fonction de la température. Courbe magenta : échantillon *as grown*. Courbe verte : même échantillon qui a subi des contraintes mécaniques. Courbe brune : même échantillon qui a subi encore plus de contraintes mécaniques. Courbe bleue : poudre (et non un monocristal). La transition AFM à T_{N1} est graduellement supprimée au détriment d'une transition à 14K due aux défauts d'empilement (figures tirées de [16]).

Cependant, l'interaction très faible de van der Waals entre les plans étant très facilement perturbable, rend cette séquence d'empilement assez précaire et des défauts d'empilement peuvent se manifester. Dans ce dernier cas, les plans s'empilent de façon ABAB où, encore une fois, la distance de décalage est de $a/3$ comme illustré à la figure 4.6a. Les auteurs rapportent leurs propos dans une étude de chaleur spécifique à champ magnétique nul où des contraintes mécaniques volontaires ont été effectuées afin de suivre l'évolution des différentes structures magnétiques dans le cristal. Sur le graphique de la figure 4.6b, des courbes de chaleur spécifique en fonction de la température sont affichées de façon à observer chaque courbe séparément (*offset vertical*).

La courbe magenta montre la transition à $T_{N1} \simeq 7\text{K}$ de l'échantillon *as grown* et la courbe verte montre que la transition perd de l'amplitude au détriment de l'apparition d'une transition à $T_{N2} \simeq 14\text{K}$. Ici, l'échantillon a été tordu de façon répétée selon l'axe c de façon à induire des défauts cristallographiques. La courbe brune montre la disparition de la transition à T_{N1} au détriment d'une grande amplitude de la transition à T_{N2} lorsqu'une fois de plus, l'échantillon a été déformé.

La dernière courbe (bleue), montre la courbe du même matériau, mais sous forme de

poudre plutôt que sous la forme d'un mono cristal.

Cette étude renforce notre hypothèse que la préparation des échantillons peut être la principale cause de la variation en amplitude de la conductivité thermique. En effet, lorsqu'on coupe un échantillon afin de lui conférer les dimensions appropriées pour les mesures thermiques, les plans de $\alpha - \text{RuCl}_3$ peuvent glisser les uns par rapport aux autres et lors de l'exfoliation, le matériau étant très flexible, les plans peuvent aussi glisser les uns par rapport aux autres, ce qui peut engendrer la modification du type d'empilement.

4.2 Conductivité thermique et champ magnétique dans le plan

Comme il a été expliqué dans la section 4.2 du chapitre 2, l'ordre antiferromagnétique peut être supprimé à l'aide d'un champ magnétique dans le plan H_{\parallel} , et de cela on peut tirer un diagramme de phase $T - H_{\parallel}$ de $\alpha - \text{RuCl}_3$. L'étude de la conductivité thermique avec un champ H_{\parallel} permet de suivre l'évolution des différentes phases magnétiques et permet d'obtenir un diagramme en accord avec le scénario proposé par l'étude de Balz *et al.* [26].

Expérimentalement, le champ magnétique créé par la bobine supraconductrice ne peut pas être dirigé avec un angle, c'est pourquoi les échantillons ont pu être collés sur des blocs de cuivre en angle. La figure 4.7 illustre la façon dont le champ magnétique dans le plan H_{\parallel} est généré.

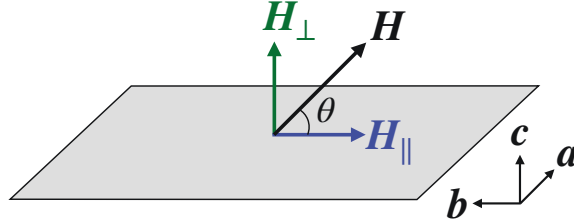


FIGURE 4.7 Schéma d'un échantillon exposé à un champ magnétique en angle dont les deux composantes H_{\parallel} et H_{\perp} servent respectivement à supprimer l'ordre AFM dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ et à générer le signal transverse lors d'une mesure d'effet Hall thermique.

Les équations 4.2 et 4.2 correspondent respectivement aux composantes parallèle et perpendiculaire au plan ab de l'échantillon.

$$H_{\parallel} = |\mathbf{H}| \sin \theta \quad (4.1)$$

$$H_{\perp} = |\mathbf{H}| \cos \theta \quad (4.2)$$

Dans le laboratoire de Sherbrooke où les mesures ont été prises, le champ maximal que peut générer l'aimant est de 15T, donc $H_{\parallel}^{\max} = 10.6\text{T}$. Quant à la composante H_{\perp} du champ, son utilité est expliquée à la section 4.3.

La figure 4.8 met en évidence l'évolution en champ magnétique H_{\parallel} de 4.5T à 8.5T de la conductivité thermique en fonction de la température entre 3K et 15K pour l'échantillon 1809A.

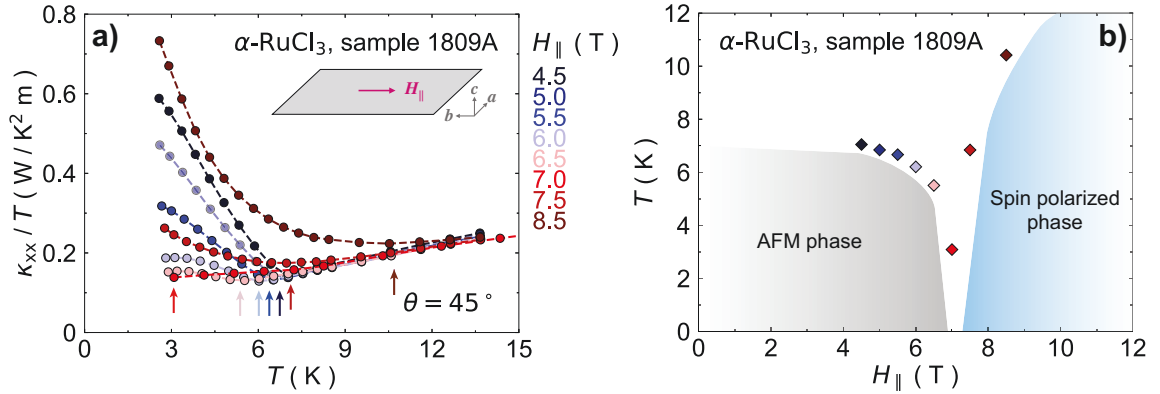


FIGURE 4.8 (a) Graphique de l'évolution en champ magnétique H_{\parallel} de la conductivité thermique tracée comme κ_{xx}/T de l'échantillon 1809A de $\alpha - \text{RuCl}_3$. Les flèches de couleur correspondent aux valeurs de températures pour lesquelles κ_{xx}/T admet un minimum. (b) Graphique du diagramme de phase expérimental T - H_{\parallel} de l'échantillon 1809A où les points de couleurs correspondent aux valeurs de température indiquées par les flèches en (a). Deux phases sont distinctes : la phase AFM bien connue de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et une phase polarisée de spins caractérisée ici par la remontée de κ_{xx}/T au-dessus de 7T sujette à débats. *Note* : voir l'annexe C pour voir les courbes séparément.

Comme il a été abordé à la section 2.3, $\alpha - \text{RuCl}_3$ est un antiferroaimant en absence de champ magnétique et sous 7K. De façon à supprimer l'ordre magnétique qui empêche l'accès à la physique sous-jacente dans une région potentiellement désordonnée à basse température, un champ magnétique H_{\parallel} est appliqué selon le plan ab des échantillons.

Sur le graphique de la figure 4.8a, la conductivité thermique affichée comme κ_{xx}/T de façon à insister sur les températures inférieures à 7K diminue en amplitude pour des valeurs de champ magnétique de 4.5T à 7T. Sur cet intervalle de champ, la zone AFM est couverte comme illustré sur le diagramme de phase T - H_{\parallel} de la figure 4.8b, où le point à 3K correspond à la limite de plus basse température mesurée de l'ordre AFM. Généralement, on s'attendrait à ce que le champ magnétique engendre l'ouverture d'un gap dans la dispersion des fluctuations de spins, ayant alors pour effet de réduire les processus diffusifs sur les phonons, cependant, dans le cas présent, le contraire est observé. En effet, en augmentant

le champ dans la région AFM entre 4.5T et 7T, les fluctuations de spins augmentent de plus en plus au fur et à mesure que $H_{\parallel} \rightarrow 7T$, ce qui correspond à la frontière de l'état paramagnétique (ou un état désordonné de spins autre que le PM), ce qui a pour effet de diminuer l'amplitude de κ_{xx}/T . À cette frontière qui délimite les deux régions de spins, ces fluctuations de spins diffusent maximalelement les phonons et c'est pourquoi on observe la plus basse amplitude de la conductivité thermique au champ critique de 7T.

Quant aux courbes de κ_{xx}/T à des champs magnétiques de 7.5T et 8.5T, on observe une nette remontée de leur amplitudes. En considérant la valeur de température pour laquelle κ_{xx}/T admet une valeur minimale entre 3K et 15K pour ces deux champs magnétiques, une phase magnétique polarisée peut être observée, comme le montre le diagramme de phase de la figure 4.8b. L'amplitude de κ_{xx}/T augmente à nouveau après 7T puisqu'un ordre magnétique apparaît. Des excitations de spins dont la nature est sujette à débat sont de plus en plus gappées par l'augmentation de H_{\parallel} et diffusent moins les phonons. Ce scénario est soutenu par la récente étude de neutrons [26] mentionnée à la section 2.4.

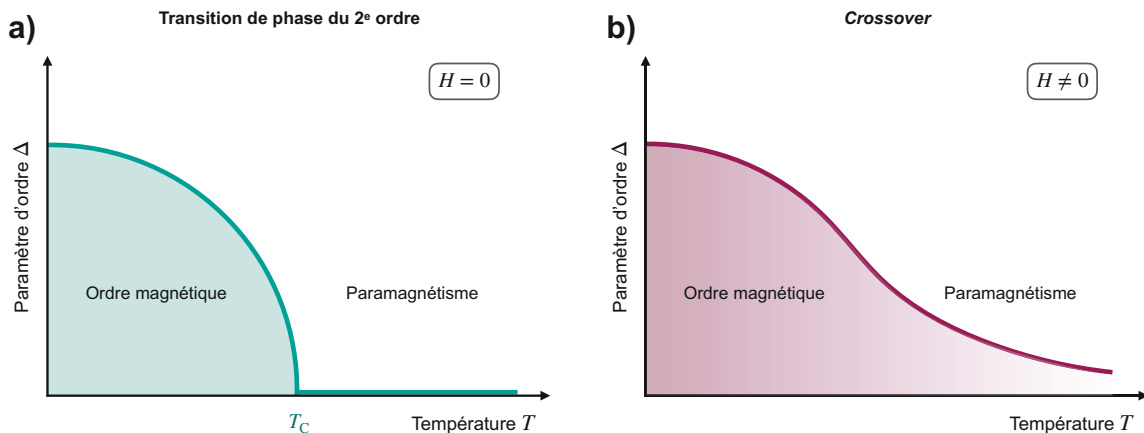


FIGURE 4.9 (a) Schéma du paramètre d'ordre d'un ordre magnétique à champ magnétique nul. La température critique T_C délimite la transition de phase du second ordre entre l'état désordonné paramagnétique et l'ordre magnétique. (b) Schéma du paramètre d'ordre d'un ordre magnétique à champ magnétique non-nul. Le concept de température critique n'est pas bien défini puisque la transition entre les deux états magnétiques est plus large et mal définie. C'est un *crossover*, plutôt qu'une transition de phase. Une transition de phase ferromagnétique serait difficile à définir puisque, par définition, une transition de phase est définie à $H = 0$.

À titre comparatif, les courbes de conductivité thermique en fonction de T dans l'état magnétique polarisé des études de Hentrich *et al.* [33] et de Yu *et al.* [25] avec celles de l'échantillon 1809A mesuré à Sherbrooke montrent que l'amplitude de la remontée est proportionnelle à H_{\parallel} sur le graphique de la figure 4.10a. De plus, la même comparaison

en fonction de H_{\parallel} cette fois montre que dans le voisinage du champ magnétique critique de 7.5T, il est impossible d'observer de façon convaincante un intervalle de champ où la conductivité thermique ne varie pas, à la fois dans les données de Yu *et al.* et celles de Sherbrooke, corroborant l'absence d'état magnétiquement désordonné dans la limite $T \rightarrow 0$ comme il a été observé dans l'étude de Kasahara *et al.* [5]. Les données de Hentrich *et al.* à 6K ne montrent pas une nette transition entre l'ordre AFM et la zone polarisée.

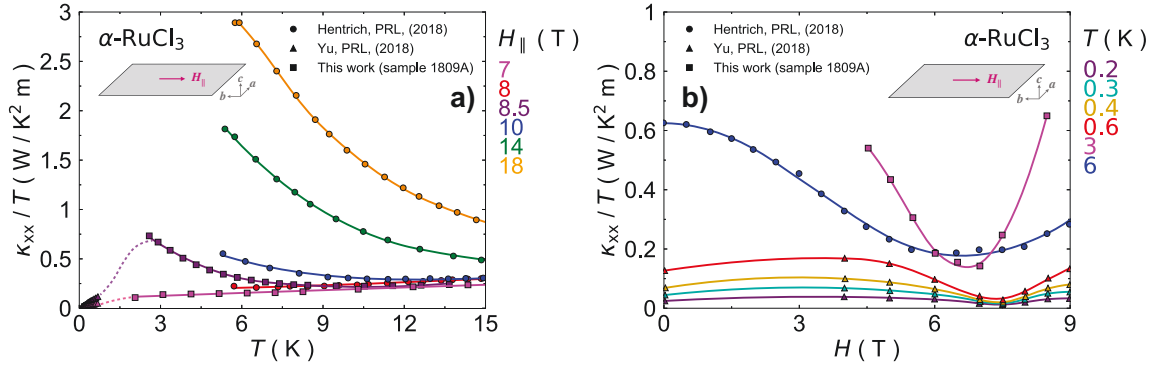


FIGURE 4.10 (a) Graphique de la conductivité thermique tracée comme κ_{xx}/T en fonction de la température qui compare trois études indépendantes (Hentrich *et al.* [33], Yu *et al.* [25] et les mesures de Sherbrooke) pour différentes valeurs de H_{\parallel} hors de l'ordre AFM. (b) Graphique de la conductivité thermique tracée comme κ_{xx}/T en fonction du champ dans le plan qui compare trois études indépendantes (Hentrich *et al.* [33], Yu *et al.* [25] et les mesures de Sherbrooke) pour différentes valeurs de T . Note : les traits pleins sont des guides pour l'oeil.

Sur le graphique de la figure 4.8a, la nature du passage entre la région se situant entre 7T et 7.5T et la phase polarisée ne semble pas correspondre à une transition de phase du second ordre. En effet, la comparaison entre la courbe de conductivité thermique à 8.5T et celle à 4.5T des graphiques des figures 4.11a et 4.11c suggère plutôt un *crossover* plutôt qu'une transition de phase. Cet argument provient de la différence entre les changements de courbure respectives des deux courbes où celle à 4.5T montre un changement très marqué, tandis que celle à 8.5T montre un changement monotone.

Ce dernier propos peut être visuellement justifié à l'aide des schémas de la figure 4.9. Le schéma de la figure 4.9a montre une transition de phase du second ordre où la température critique T_C (T_N dans le cas présent) différencie bien l'ordre AFM et le paramagnétisme. En effet, les courbes comprises entre 4.5T et 6.5T affichent un changement de courbure prononcé, ce qui correspond bien à une transition de phase entre les états antiferromagnétique et paramagnétique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$.

Par contre, pour les courbes de conductivité thermique prises à 7.5T et 8.5T, la transition

entre l'état paramagnétique et l'état polarisé semble correspondre davantage à un *crossover* illustré sur la figure 4.9b puisque le changement de courbure des deux courbe est beaucoup plus lisse. Or, selon la théorie de Ginzburg-Landau sur les transitions de phase, il ne serait pas approprié de caractériser la phase polarisée illustrée sur les figures 4.8b et 4.11b comme ferromagnétique, puisqu'une transition de phase de ce type se produit normalement à $H = 0T$. Il pourrait s'agir de ferromagnétisme induit cependant.

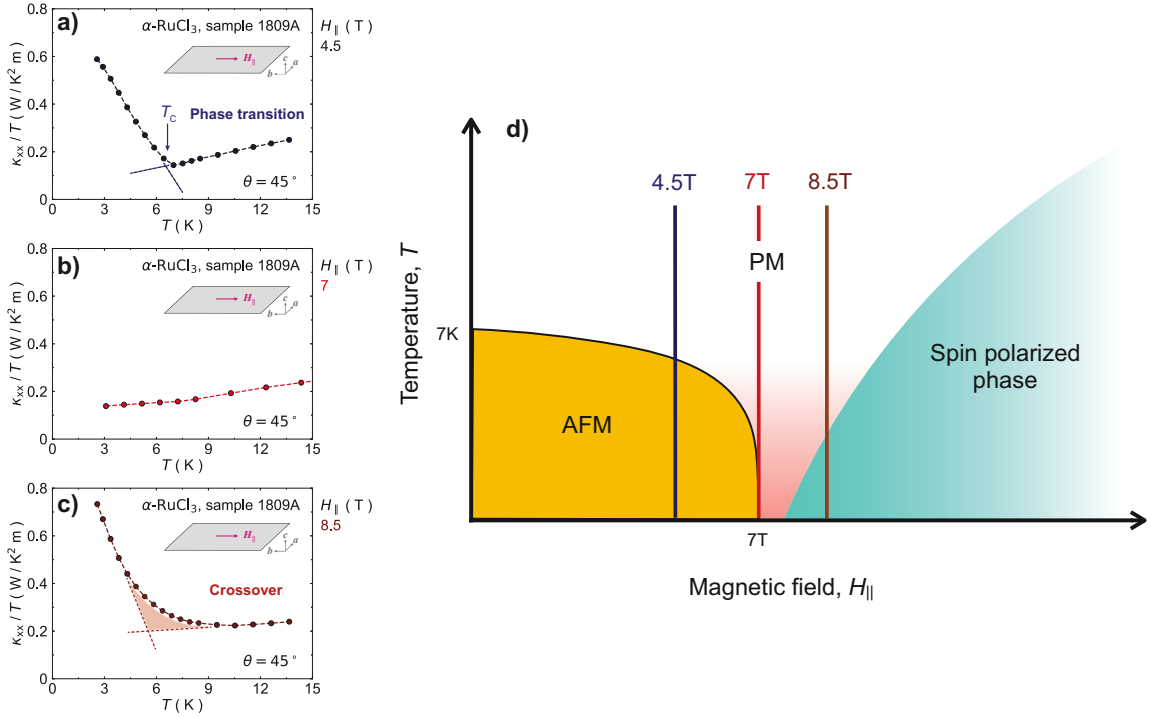


FIGURE 4.11 Graphiques de κ_{xx}/T en fonction de T pour trois différentes régions du diagramme de phase magnétique de $\alpha - RuCl_3$ pour (a) $H_{||} = 4.5T$ (b) $H_{||} = 7T$ (c) $H_{||} = 8.5T$. (d) Schéma du diagramme de phase de $\alpha - RuCl_3$ où les trois traits de couleur correspondent aux couleurs des trois courbes de κ_{xx}/T des graphiques en (a), (b) et (c).

Revenons maintenant à l'étude de Kasahara *et al.* [5] dont l'objet de l'étude est l'observation des fermions de Majorana dans $\alpha - RuCl_3$. Les fermions de Majorana sont, d'après l'étude, observables sur un intervalle de champ magnétique dans le plan $H_{||}$ restreint à environ 1T (voir la figure 2.13). Notons cependant sur le graphique de la figure 4.8a, la courbe de κ_{xx}/T , l'intervalle de champ entre les courbes à 7T et 7.5T est d'un demi Tesla. Afin de pouvoir conclure que la région 2 (voir la figure 2.11) est une région magnétiquement désordonnée, il aurait fallu mesurer la conductivité thermique à plusieurs valeurs de $H_{||}$, notamment 7.1T, 7.2T, 7.3T et 7.4T par exemple, afin d'observer la même courbe que celle

à 7T. Il n'est toutefois pas possible ici de conclure quoique ce soit puisqu'il manque des données en ce sens.

Revenons maintenant sur la sous-section 2.7 où les études du transport thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ par différents groupes de recherche montrent que les phonons sont diffusés par des fluctuations de spins. Notre étude montre que dans l'ordre AFM, la remontée de la conductivité thermique tracée comme κ_{xx}/T est due au fait que les spins sont gappés et qu'ils diffusent moins les phonons comme le montrent les graphiques des figures 4.8a et 4.11a. Quant à la remontée de la conductivité thermique dans l'état magnétique polarisé, elle est causée par le même processus que dans l'ordre AFM : les fluctuations magnétiques sont d'autant plus gappées avec l'augmentation du champ magnétique H_{\parallel} , le montrent les graphiques des figures 4.8a, 4.10a et 4.11c. Dans la région qui délimite les deux états magnétiques, la conductivité thermique admet la plus faible valeur, ce qui est expliqué par la forte diffusion des phonons sur les fluctuations de spins. Nos résultats sont en accord avec ceux de l'étude de Hentrich *et al.* [33] et ceux de Yu *et al.* [25].

4.3 Effet Hall thermique κ_{xy}

Voyons maintenant les données d'effet Hall thermique κ_{xy} dans les échantillons mesurés à Sherbrooke, mais avant d'entrer dans le vif du sujet, revenons à l'étude de Kasahara *et al.* [5] qui réalise l'observation de l'effet Hall thermique quantifié. Dans leur étude, les auteurs suppriment l'ordre AFM et génère l'effet Hall thermique à l'aide de deux champs magnétiques H_{\perp} et H_{\parallel} , comme le montre le graphique de la figure 4.12b (en réalité, l'échantillon est tourné d'un angle de 60 degrés pour créer cet effet, voir la figure 4.12a).

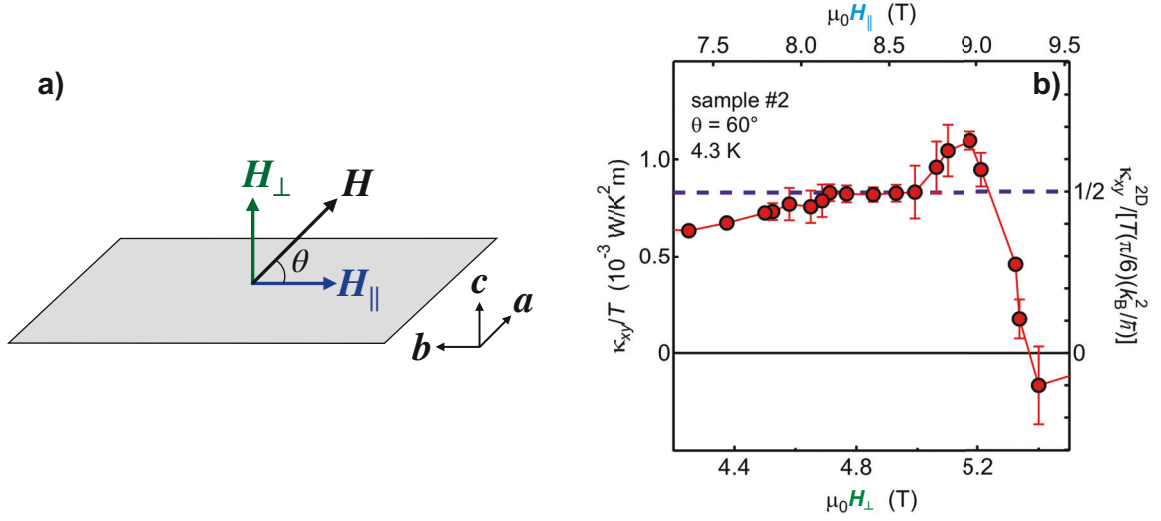


FIGURE 4.12 (a) Schéma d'un échantillon exposé à un champ magnétique en angle dont les deux composantes H_{\parallel} et H_{\perp} servent respectivement à supprimer l'ordre AFM dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ et à générer le signal transverse lors d'une mesure d'effet Hall thermique. (b) Graphique de l'effet Hall thermique mis en évidence comme κ_{xy}/T en fonction des composantes H_{\parallel} et H_{\perp} du champ magnétique (figure adaptée de [5]).

La composante H_{\parallel} permet de supprimer l'ordre AFM, comme mentionné à la section 2.3 et la composante H_{\perp} permet de générer le gradient thermique de Hall ΔT_y mentionné à la sous-section 3.1.3. Cependant, avant de jouer avec la suppression de l'ordre AFM, il est important de bien comprendre l'effet Hall thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ seulement avec un champ H_{\perp} , et c'est ce qui est présenté dans cette présente section. En effet, κ_{xy} est étudié pour une direction de champ magnétique uniquement selon l'axe c de l'échantillon, c'est-à-dire que l'ordre AFM n'est pas supprimé ($H_{\parallel} = 0$). La région 2 du diagramme de phase de la figure 2.11 n'est donc pas explorée dans ce qui suit.

D'abord, le graphique de la figure 4.13 compare l'effet Hall thermique à 15T en fonction de la température pour les échantillons 1804C, 1804D et 1804E de $\alpha - \text{RuCl}_3$ (tous les trois coupés à partir du même échantillon-mère). Comme pour la section précédente où l'on a pu observer que la conductivité thermique de trois échantillons variait beaucoup, la même situation est constatée pour κ_{xy} ici. On en conclue que les défauts d'empilement sont susceptibles d'affecter également l'effet Hall thermique. Il est à noter que l'ordre des amplitudes de κ_{xy} ne correspond pas à celui de κ_{xx} , nous n'avons pas su identifier à ce jour la logique qui relie ces amplitudes entre elles. De plus, le signal de l'échantillon 1804C persiste à des températures supérieures à celle des autres échantillons. Bien que les caractéristiques principales de la courbe soient en accord avec celles des deux autres échantillons, il est

possible qu'une physique différente explique une telle différence à haute température.

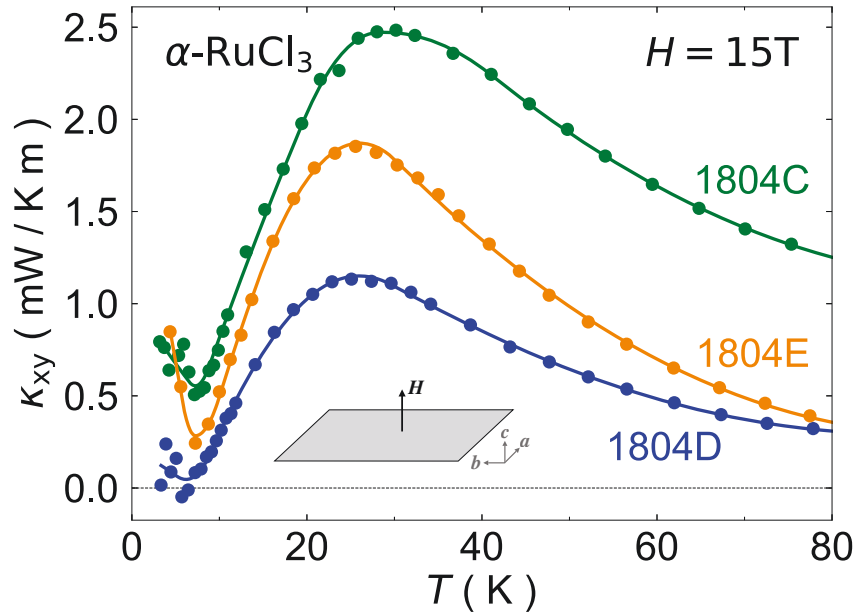


FIGURE 4.13 Graphique de l'effet Hall thermique κ_{xy} à $H = 15\text{T}$ en fonction de la température T pour les échantillons 1804C, 1804D et 1804E de $\alpha - \text{RuCl}_3$. Note : les traits pleins sont des guides pour l'oeil.

Ensuite, dans tous les échantillons, une remontée de l'effet Hall thermique apparaît sous T_N . Cette remontée est attribuable à l'apparition de l'ordre AFM observé dans κ_{xx} et pourrait provenir d'un effet Hall thermique des phonons. Classiquement, les phonons sont perçus comme des quasi-particules non chargées qui ne peuvent se coupler au champ magnétique externe. Cependant, certains matériaux présentent du couplage spins-réseau où les vibrations (phonons) des ions se couplent aux spins. En présence d'un champ magnétique, les phonons participent au transport transverse via l'effet du champ magnétique sur les quasi-particules sensibles au magnétisme tels des fluctuations de spins ou des magnons si l'interaction Dzyaloshinskii-Moriya est significative [21]. Pour des températures supérieures à T_N , le signal affiche un pic autour de 30K jusqu'à ce que le signal s'estompe autour de $T = J_K/k_B \simeq 100\text{K}$. Autour de cette température caractéristique, l'effet Hall thermique s'estompe dû à la transition entre l'état liquide de spins et paramagnétique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ où les corrélations entre les spins diminuent considérablement. La valeur de J_K/k_B demeure débattue, mais se situe sensiblement entre 85K et 100K selon les études de transports thermique [40, 38], allant même jusqu'à une valeur d'environ 180K observée par une étude de résonance magnétique nucléaire [35]. Quant à certaines études spectroscopiques [63, 64, 32, 65], les données tendent à s'accorder à une valeur de J_K/k_B autour de

100K.

Le graphique de la figure 4.14 met en évidence les conductivités thermiques longitudinale et transverse tracées comme κ_{ij}/T à 15T respectivement pour l'échantillon 1804C. On observe sans équivoque deux signaux qui sont très similaires qualitativement, notamment par la forme des courbes mais aussi par la valeur de température où les signaux commencent à augmenter fortement, en l'occurrence T_N .

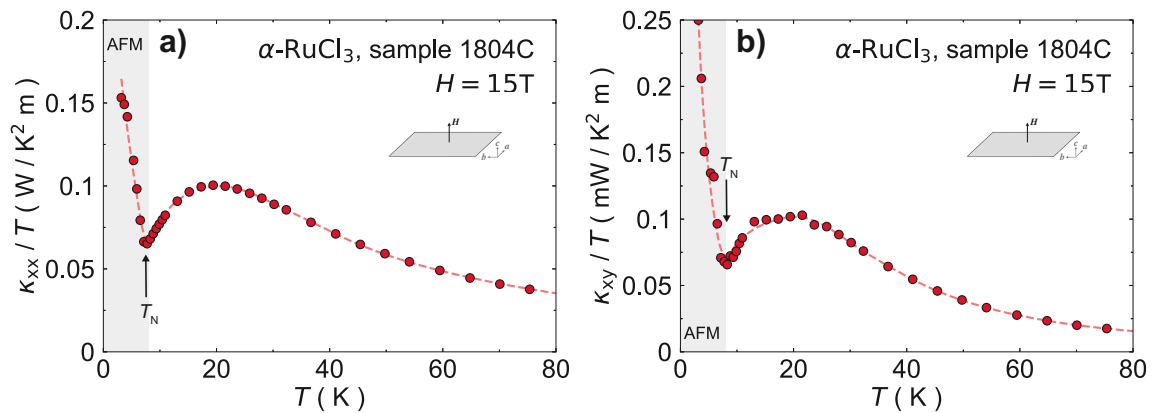


FIGURE 4.14 (a) Graphique de κ_{xx}/T en fonction de T à $H = 15T$ de l'échantillon 1804C. (b) Graphique de κ_{xy}/T en fonction de T à $H = 15T$ de l'échantillon 1804C. Les données sont tracées de façon à souligner les similarités entre les deux canaux de transport. *Note* : les traits pointillés rouges sont des guides pour l'oeil.

Cette comparaison met en lumière le fait que les mêmes processus diffusifs agissent de façon similaire dans les deux canaux de transport. En plus du fait que les deux conductivités thermique orthogonales montrent des tendances similaires, la dépendance en champ magnétique de celles-ci à haute température (au-dessus de T_N) semble suggérer une augmentation non-négligeable de la diffusion des phonons sur les excitations de spins. Les graphiques de la figure 4.15 met en lumière κ_{xx} en fonction de T et κ_{xy}/H en fonction de T pour différentes valeurs de H ¹.

1. Ici, κ_{xy} est normalisée par la valeur du champ magnétique, puisque le signal transverse augmente avec l'augmentation du champ.

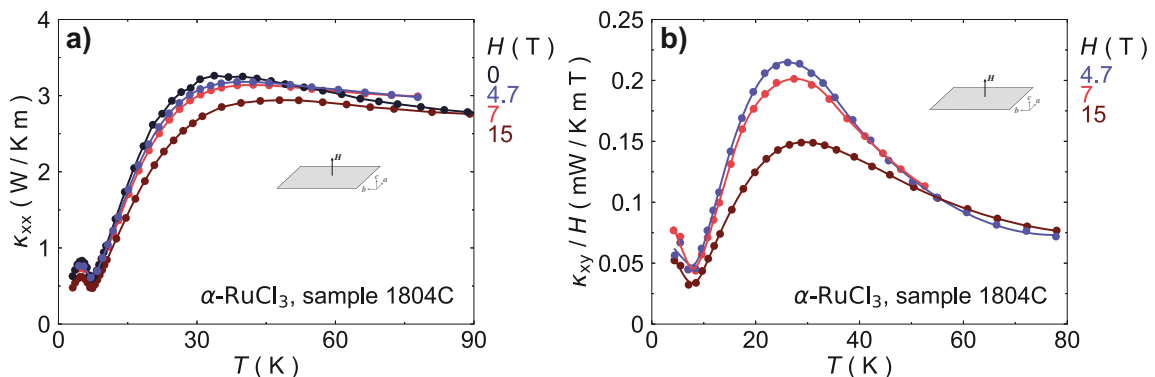


FIGURE 4.15 (a) Graphique de κ_{xx} en fonction de T pour différentes valeurs de champ magnétique hors-plan pour l'échantillon 1804C. (b) Graphique de κ_{xy}/H en fonction de T pour différentes valeurs de champ magnétique hors-plan pour l'échantillon 1804C. *Note* : les traits pleins sont des guides pour l'oeil (en (b) seulement).

L'augmentation de la diffusion des porteurs de chaleur sur les excitations de spins se traduit par une diminution de l'amplitude du signal.

Le graphique de la figure 4.16 met en évidence la comparaison de l'effet Hall thermique de l'échantillon 1804C avec la littérature. Dans cette configuration du champ magnétique ($H_{\parallel} = 0$), il existe seulement deux études, une par Kasahara *et al.* [40] et une autre de Hentrich *et al.* [38] qui sont rapportées dans la littérature. De manière semblable à la comparaison faites dans le graphique de la figure 4.3 de κ_{xx} , on note un accord qualitatif entre les échantillons mesurés à Sherbrooke et l'étude de Hentrich *et al.*, outre le fait que nos courbes (Sherbrooke) affichent une remontée de κ_{xy} dans l'ordre AFM et que les auteurs de Hentrich *et al.* s'arrêtent à T_N . Notre étude de $\alpha - \text{RuCl}_3$ est la seule à ce jour qui observe de façon claire et robuste une importante remontée du signal sous T_N .

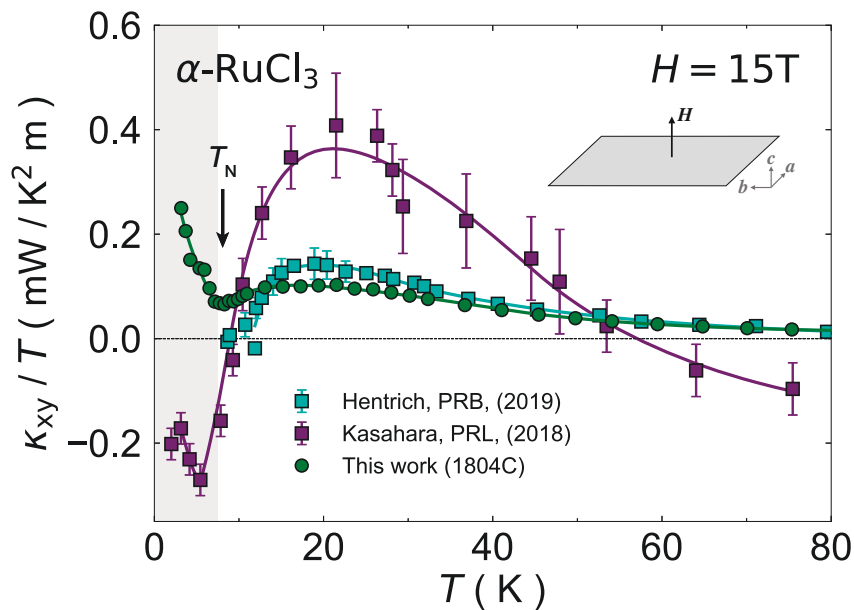


FIGURE 4.16 Graphique de l'effet Hall thermique affiché comme κ_{xy}/T à $H = 15\text{ T}$ en fonction de la température T pour $\alpha\text{-RuCl}_3$ qui compare les études [40, 38] et l'échantillon 1804C mesuré à Sherbrooke. *Note* : les traits pleins sont des guides pour l'oeil.

Concernant la courbe de l'étude du groupe japonais, elle est la seule qui montre des valeurs négatives à basse et à haute température. De plus, le signal observé est, comme pour le canal longitudinal, trois fois supérieur au reste des autres études et leur courbe semble être décalée vers le bas par rapport aux courbes de Sherbrooke et du groupe allemand. Les auteurs de cette étude affirment que l'amplitude de κ_{xy} est corrélée avec celle de κ_{xx} qui est exceptionnellement grande. L'étude menée à Sherbrooke montre le contraire. En effet, l'échantillon 1804C affiche un des plus faibles κ_{xx} tandis qu'il affiche le plus grand κ_{xy} .

Maintenant que les mesures d'effet Hall thermique observées dans l'étude de Sherbrooke sont qualitativement en accord avec la littérature, une comparaison entre une courbe de κ_{xy} expérimentale avec la courbe issue de calculs théoriques provenant de l'étude de Nasu *et al.* [13] abordés dans la section 1.2.3 permettent d'observer des similitudes ainsi que des différences notables.

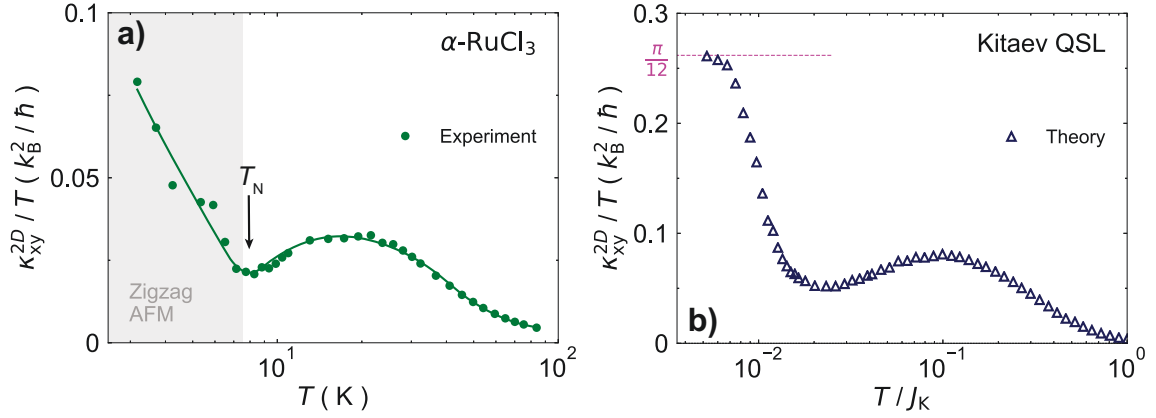


FIGURE 4.17 Graphiques semi logarithmiques de l'effet Hall thermique affiché comme κ_{xy}^{2D} / T en fonction de la température (a) de l'échantillon 1804C de $\alpha - \text{RuCl}_3$ mesuré à Sherbrooke (la zone grisée correspond à la zone AFM) et (b) d'une simulation théorique du modèle de Kitaev. (la figure est reproduite à partir de [13]). Note : le trait plein vert est un guide pour l'oeil (en (a) seulement).

Sur la figure 4.17, les graphiques de l'effet Hall thermique (en unité théorique) κ_{xy}^{2D} / T en fonction de la température d'une courbe expérimentale (figure 4.17a) et de la courbe théorique (figure 4.17b) permet une comparaison qualitative directe. À première vue, leur ressemblance peut sembler frappante, cependant certaines caractéristiques permettent de conclure que l'effet Hall thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ ne peut être complètement expliqué par une théorie de transport n'incluant que les fermions de Majorana [1] ou encore une théorie qui couple les fermions de Majorana aux phonons [37, 36].

D'abord, rappelons que le calcul théorique est fait en ne considérant que les fermions de Majorana diffusés par les flux Z_2 uniquement. Considérons d'abord le fait que la valeur maximale de l'effet Hall thermique d'un LSQ à $T / J_K \simeq 0.1$ est environ 2.5 fois supérieure à la valeur maximale de l'effet Hall thermique de $\alpha - \text{RuCl}_3$ à $T \simeq 17\text{K}$. Pourtant, la forme des deux courbes est très similaire et elles semblent montrer la même dépendance en température.

Penchons-nous maintenant sur la partie à basse température des deux courbes. Premièrement, la courbe de $\alpha - \text{RuCl}_3$ montre un effet Hall thermique qui augmente pour $T < T_N$ (zone grisée). L'augmentation du signal pourrait être expliqué par les phonons, comme mentionné précédemment. Maintenant, la courbe du LSQ théorique augmente aussi pour $T / J_K \simeq 0.023$. Si on considérait une énergie caractéristique $J_K / k_B = 100\text{K}$, l'augmentation de κ_{xy}^{2D} / T se manifesterait autour de 5K ou 6K. Cependant, la remontée du signal n'est en aucun cas attribuable au même processus que la courbe sur le graphique de la figure 4.17a. En effet, l'augmentation du signal pour la courbe du graphique de la figure 4.17b est due,

comme mentionné à la sous-section 1.2.3, aux fermions de Majorana qui se manifestent comme des états de bord. Ainsi, la physique à basse température pour les échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ de notre étude à Sherbrooke est très différente de la physique prédite par la théorie du transport dans le liquide de spins Kitaev (étude de Nasu *et al.*). En effet, comme mentionné précédemment, l'absence de zone désordonnée dans le diagramme de phase $T-H_{\parallel}$ vient mettre hors de cause les fermions de Majorana ; en s'appuyant sur la théorie de Kitaev, la présence de ces quasi-particules exotiques dans le transport ne serait viable que si un état désordonné de spins subsistait à $T \rightarrow 0$. La remontée de l'effet Hall thermique sous T_N dans nos échantillons est attribuable à des porteurs de chaleur différents de ceux prédits par le modèle de Kitaev.

En revenant à la figure 4.12, les courbes d'effet Hall thermique présentées dans ce présent chapitre ont été mesurées dans une configuration bien différente de celle que les auteurs de l'étude de Kasahara *et al.* où le champ magnétique a été appliqué en angle. En effet, notre étude a été menée dans la configuration pour laquelle le champ magnétique externe est complètement perpendiculaire au plan ab des échantillons. Donc, nos mesures de κ_{xy} ont donc été menées dans l'ordre AFM tandis que le groupe japonais a supprimé l'ordre afin de révéler la physique de Kitaev sous-jacente.

Seulement, la physique du transport de chaleur transverse dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ doit être comprise dans l'ordre AFM, puisque des quasi-particules électriquement neutres conduisent mieux la chaleur dans l'ordre magnétique que dans l'état désordonné pour $T > T_N$. Depuis quelques années maintenant, il semble que la chiralité de spin puisse être un concept clé pour l'effet Hall thermique dans les matériaux isolants frustrés. Cette chiralité de spin peut être modélisée mathématiquement comme $\sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{D}_{ij} \cdot (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$ qui correspond à l'interaction de Dzyaloshinskii–Moriya. Cet effet génère une faible composante ferromagnétique dans le réseau malgré des spins interagissant antiferromagnétiquement et il a été montré que la présence de ce terme dans un modèle de spins 1/2 favorise l'émergence de chiralité de spins et d'un signal κ_{xy} [49]. Notre étude de l'effet Hall thermique à Sherbrooke permet d'adresser plusieurs questionnements quant aux conditions requises permettant d'observer les fermions de Majorana. En effet, la prédiction de Kitaev en relation aux fermions de Majorana dans un liquide de spins quantiques ne semble pas être aussi triviale à observer que l'étude de Kasahara *et al.* [5] semble le prétendre. L'effet Hall dans la phase antiferromagnétique doit être comprise d'abord.

4.4 Effet Hall thermique et champ magnétique dans le plan

De façon à mesurer l'effet Hall thermique hors de l'ordre AFM, l'échantillon 1901A a été placé en angle de 45° par rapport à la direction du champ généré par la bobine supraconductrice afin qu'une composante du champ magnétique dans le plan supprime l'ordre magnétique (H_{\parallel}) et que l'autre composante génère l'effet Hall thermique (H_{\perp}). Les graphiques de la figure 4.18 mettent en évidence κ_{xx}/T en fonction de T et κ_{xy}/T pour des valeurs différentes de champ magnétique dans le plan H_{\parallel} .

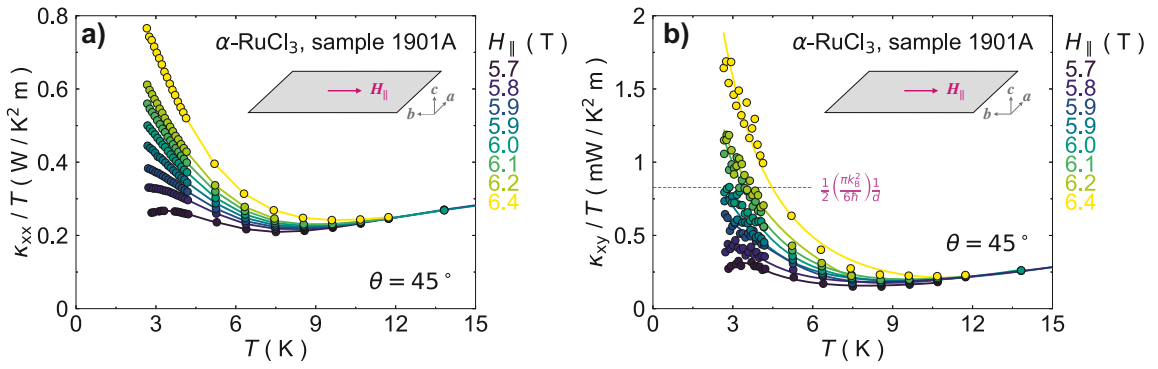


FIGURE 4.18 (a) Graphique de κ_{xx}/T en fonction de T pour différentes valeurs de H_{\parallel} de l'échantillon 1901A. (b) Graphique de κ_{xy}/T en fonction de T pour différentes valeurs de H_{\parallel} de l'échantillon 1901A. Le trait pointillé correspond à la valeur quantifiée prédite par le modèle de Kitaev et ne met pas en évidence une quantification de la conductivité thermique de Hall *Note* : les traits pleins sont des guides pour l'oeil (en (b) seulement).

Les dépendances en champ magnétique des conductivités thermiques sont comparables et les deux propriétés de transport de chaleur augmentent de façon importante avec l'augmentation du champ dans le plan. Il est à noter ici que pour des courbes de κ_{xx}/T qui semblent très similaires à celles de l'échantillon 1809A à la figure 4.11a, les valeurs de champ magnétique peuvent sembler plus basses pour celles du graphique de la figure 4.18a. Cet effet peut être expliqué par le fait que le champ magnétique dans le plan peut être appliqué selon $[1, 0, 0]$ (selon un sommet) ou selon $[1, 1, 0]$ (selon une arête) du matériau. Les deux directions montrent une anisotropie perceptible dans la susceptibilité magnétique comme le montre la figure 4.19 où un champ magnétique appelé B_{C1} par les auteurs de [66] correspond à une transition de phase antiferromagnétique. C'est pour cette raison que les valeurs de champ H_{\parallel} sont inférieures dans l'échantillon 1901A où le champ magnétique a été appliqué selon $[1, 1, 0]$ plutôt que selon $[1, 0, 0]$ dans l'échantillon 1809A : T_N doit être plus basse que 7K.

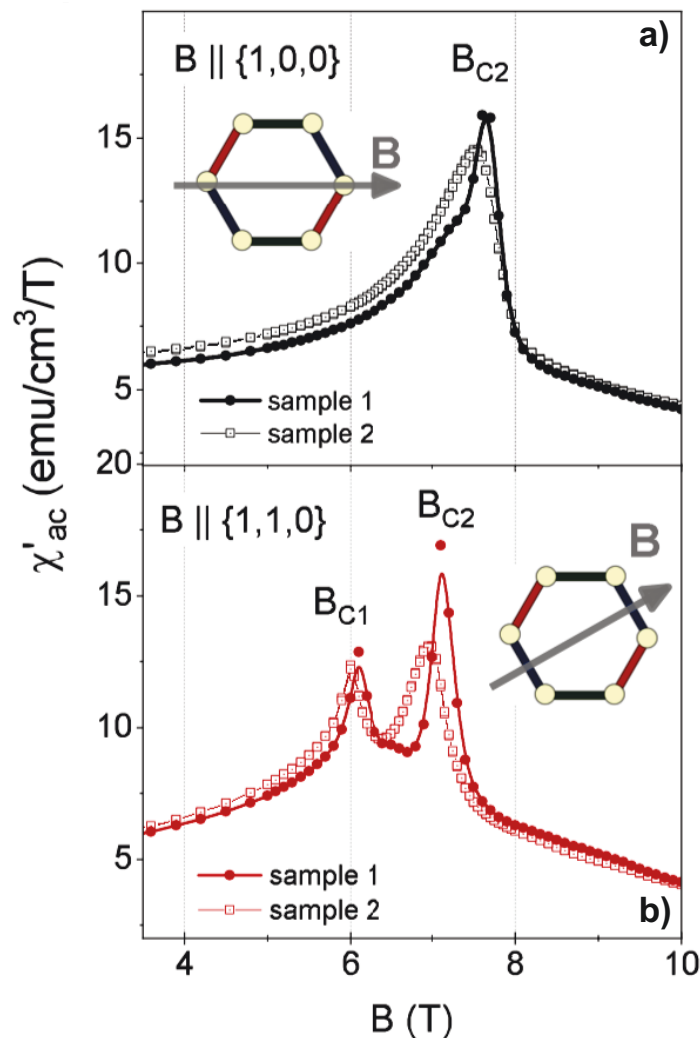


FIGURE 4.19 (a) Partie réelle de la susceptibilité magnétique AC en fonction du champ magnétique dans le plan appliqué selon la direction $[1, 0, 0]$. Un pic correspondant à la transition de phase AFM est observé à environ 7.5T. (b) Partie réelle de la susceptibilité magnétique AC en fonction du champ magnétique dans le plan appliqué selon la direction $[1, 1, 0]$. Un pic supplémentaire associé à une transition de phase est observé à environ 6T (figure tirée de [66]).

D'après les graphiques des figures 4.18a et 4.18b où les courbes des différents canaux ont la même forme et la même tendance en champ magnétique. Sous 12K, les courbes commencent à se séparer et plus le champ dans le plan est élevé, plus l'amplitude de κ_{xy}/T augmente aussi. De plus, les courbes d'effet Hall thermique pour $H_{\parallel} = 5.7$ K et $H_{\parallel} = 5.8$ K tendent à diminuer sous environ 3.5K tandis que les courbes à $H_{\parallel} \geq 5.9$ K tendent à diverger sous 3.5K. Si la quantification de l'effet Hall thermique était observable dans l'échantillon 1901A, il faudrait raffiner davantage les valeurs de H_{\parallel} entre 6.1T et 6.2T ce qui signifie un

intervalle de champ très faible de 100mT. Cette observation contredit les résultats de l'étude de Kasahara *et al.* [5] qui a motivé ce mémoire. L'étude japonaise observe la quantification sur un intervalle dix fois supérieur.

Finalement, la similarité de κ_{xx}/T et κ_{xy}/T dans l'échantillon 1901A pointe vers le scénario que l'effet Hall thermique dans $\alpha - \text{RuCl}_3$ est dû aux phonons puisque les porteurs de chaleur sont les phonons dans le canal longitudinal. D'après nos résultats donc, le scénario de l'effet Hall thermique phononique semble être le plus plausible puisque les courbes de κ_{xx}/T et κ_{xy}/T dans l'ordre AFM (voir la figure 4.14) et dans l'ordre polarisé de spins (voir la figure 4.18) sont qualitativement comparables et puisque les phonons dominant le transport longitudinal, ils dominent aussi le transport transverse. Ce scénario est similaire à celui proposé par l'étude de Hentrich *et al.* [38].

Conclusion

Suite aux résultats qui ont été colligés dans ce travail de maîtrise sur l'isolant de Mott $\alpha - \text{RuCl}_3$, les connaissances sur les phénomènes impliqués dans le transport de chaleur se sont précisées davantage et corroborent certaines hypothèses issues de la littérature. Cependant, le résultat phare sur lequel se base l'initiative de cet ambitieux projet de maîtrise n'a pas été reproduit. Néanmoins, plusieurs résultats forts ont été mis de l'avant.

Un premier résultat tiré de notre étude montre que les défauts d'empilement constituent probablement un enjeu important dans la qualité des mesures de conductivité thermique et de conductivité de Hall. De plus, ceux-ci sont difficiles à anticiper et leur rôle dans les processus de transport est difficile à prévoir.

Un deuxième résultat important dans la compréhension de $\alpha - \text{RuCl}_3$ qui n'avait jamais été rapporté est l'importante augmentation de la conductivité thermique de Hall κ_{xy}/T dans l'ordre antiferromagnétique, témoignant de la possible nature phononique des porteurs de chaleur dans l'ordre à longue portée.

Un troisième résultat de l'étude menée à Sherbrooke est celui de l'importante remontée des conductivités thermiques longitudinale κ_{xx}/T et de Hall κ_{xy}/T dans l'état magnétique polarisé au-delà de 7T. D'ailleurs, la similitude des dépendances en température T et en champ magnétique dans le plan H_{\parallel} des deux canaux de transport suggère que les phonons sont les porteurs de chaleur impliqués dans $\alpha - \text{RuCl}_3$.

Finalement, aucun intervalle en champ magnétique dans le plan H_{\parallel} qui pourrait suggérer un état désordonné de spins (donc un état très diffusif) n'a été observé ni dans κ_{xx} ni dans κ_{xy} . Ce résultat pointe vers le scénario qui contredit celui de l'étude phare de Kasahara *et al.* [5] et qui exclut toute présence de fermions de Majorana.

Finalement, les résultats de ce travail de maîtrise seront publiés en décembre 2019 et pourront peut-être constituer une base solide et pertinente dans la compréhension de

$\alpha - \text{RuCl}_3$. Une chose est certaine cependant, la recherche sur ce matériau doit se poursuivre et les résultats publiés par Kasahara *et al.* doivent être confirmés ou infirmés par plusieurs groupes de recherche afin de discriminer les deux scénarios envisageables : le transport de chaleur par les fermions de Majorana ou par les phonons.

Annexe A

Échantillons

A.1 Échantillons mesurés et facteurs géométriques

| Code | L (μm) | w (μm) | t (μm) |
|------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| Z0326z (PK1232A) | (1511 ± 250) | (2002 ± 35) | (256 ± 2) |
| Y0326z (PK1232A) | (1988 ± 300) | (1813 ± 30) | (296 ± 25) |
| X0326z (PK1232A) | (1276 ± 270) | (2114 ± 10) | (246 ± 20) |

TABLE A.1 Tableau des échantillons de $\alpha - \text{RuCl}_3$ et de leurs dimensions géométriques pour la configuration 1 des contacts (figure A.1).

| Code | L_{23} (μm) | L_{56} (μm) | w (μm) | t (μm) |
|--------------------------|----------------------------|----------------------------|-----------------------|-----------------------|
| 1804A (PK1232A) | (840 ± 155) | (892 ± 135) | (2131 ± 2) | (21 ± 2) |
| 1804B (PK1232A) | (1377 ± 146) | (1436 ± 149) | (1830 ± 100) | (7 ± 1) |
| 1804C (PK1232A) | (1112 ± 167) | (956 ± 174) | (3516 ± 2) | (80 ± 11) |
| 1804D (PK1232A) | (455 ± 163) | (643 ± 181) | (3569 ± 8) | (26 ± 2) |
| 1804E (PK1232A) | (590 ± 156) | (610 ± 124) | (3047 ± 20) | (102 ± 8) |
| 1809A (square 1) | (696 ± 206) | (789 ± 241) | (2259 ± 56) | (135 ± 2) |
| 1809B (square 2) | (1030 ± 305) | (998 ± 238) | (2161 ± 35) | (180 ± 15) |
| 1809C (bar 5) | (359 ± 138) | (366 ± 174) | (2135 ± 125) | (97 ± 8) |
| 1810A (878 #4 as grown) | (1019 ± 200) | (981 ± 150) | (1828 ± 50) | (198 ± 8) |
| 1810B (878 #2 as grown) | (1952 ± 350) | (2408 ± 300) | (3174 ± 100) | (393 ± 60) |
| 1810A1 (878 #4 as grown) | (1205 ± 231) | - - - | (1828 ± 50) | (198 ± 8) |
| 1811A (PK1232B) | (612 ± 200) | (633 ± 291) | (1395 ± 25) | (38 ± 1) |
| 1811B (PK1232B) | (599 ± 271) | (520 ± 242) | (1682 ± 32) | (26 ± 1) |
| 1901A (PK1232B) | (570 ± 192) | (572 ± 136) | (2579 ± 5) | (89 ± 6) |
| 1901B (PK1232B) | (682 ± 176) | (784 ± 171) | (3065 ± 3) | (161 ± 18) |

TABLE A.2 Tableau des échantillons de α – RuCl_3 et de leurs dimensions géométriques pour la configuration 2 des contacts (figure A.2).

| Code | L_{24} (μm) | L_{68} (μm) | w (μm) | t (μm) |
|------------------|----------------------------|----------------------------|-----------------------|-----------------------|
| V0326z (PK1232A) | (1951 ± 309) | (2189 ± 249) | (2710 ± 36) | (137 ± 18) |
| W0326z (PK1232A) | (1415 ± 210) | (1523 ± 176) | (1081 ± 3) | (218 ± 29) |

TABLE A.3 Tableau des échantillons de α – RuCl_3 et de leurs dimensions géométriques pour la configuration 3 des contacts (figure A.3).

A.2 Configurations des contacts des échantillons

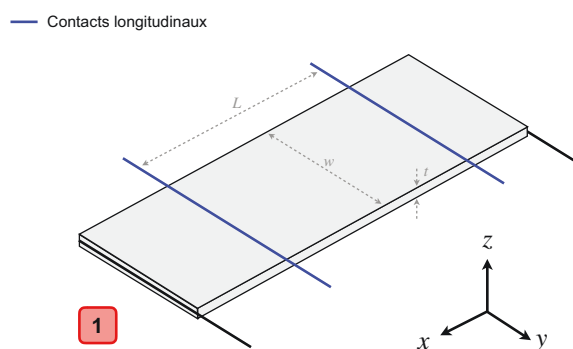


FIGURE A.1 Schéma de la configuration 1 des contacts sur un échantillon.

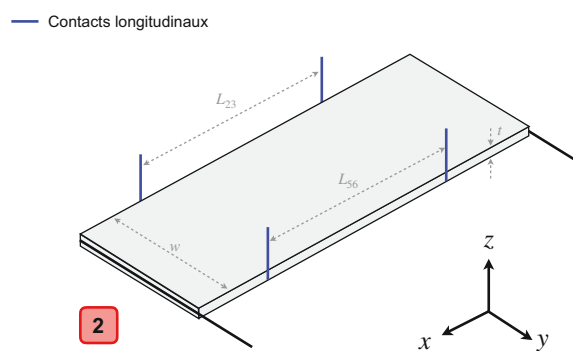


FIGURE A.2 Schéma de la configuration 2 des contacts sur un échantillon.

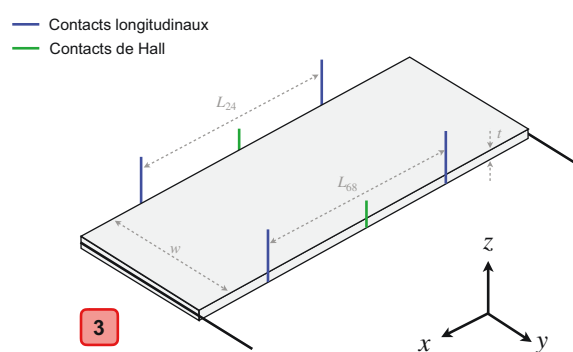


FIGURE A.3 Schéma de la configuration 3 des contacts sur un échantillon.

Annexe B

Figures supplémentaires du modèle de Kitaev [1, 2]

B.1 Spectre d'énergie des fermions de Majorana, $H = 0$

L'équation B.1 correspond au spectre d'énergie du modèle de Kitaev pour le cas où aucun champ magnétique est appliqué sur le système :

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = \pm 2J_K \sqrt{3 + \cos(k_x) + 4 \cos\left(\frac{k_x}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_y}{2}\right)} \quad (\text{B.1})$$

où J_K est l'énergie caractéristique du modèle de Kitaev. Pour de faibles valeurs de k_x et k_y , la relation de dispersion devient linéaire (de type Dirac) en $|\mathbf{k}|$ et correspond à l'équation 1.5 de la sous-section 1.2.2 du premier chapitre. Sur le graphique de la figure B.1, le spectre montre six cônes de Dirac dans la zone de Brillouin.

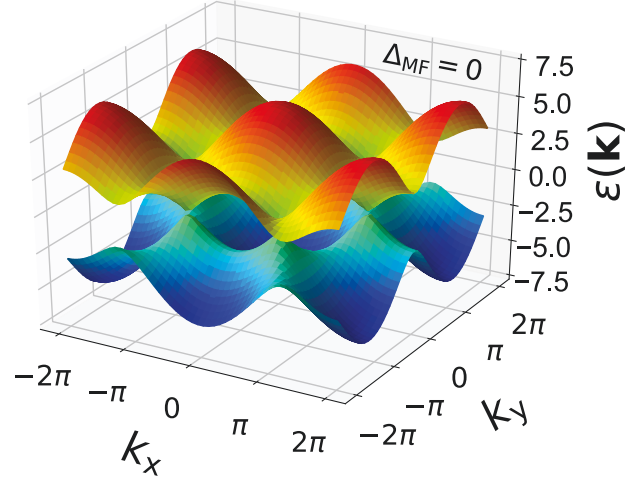


FIGURE B.1 Graphique du spectre en énergie des fermions de Majorana sans champ magnétique externe. Six cônes de Dirac sont présents dans la première zone de Brillouin.

B.2 Spectre d'énergie des fermions de Majorana, $H \neq 0$

Lorsqu'un champ magnétique H est appliqué, le spectre d'énergie est donné par l'équation B.2 et devient gappé.

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = \pm \left\{ 4J_K^2 \left[3 + \cos(k_x) + 4 \cos\left(\frac{k_x}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_y}{2}\right) \right] + 64\beta^2 \left[\sin^2\left(\frac{k_x}{2}\right) \left\{ \cos\left(\frac{k_x}{2}\right) - \cos\left(\frac{\sqrt{3}k_y}{2}\right) \right\}^2 \right] \right\}^{1/2} \quad (\text{B.2})$$

avec $\beta = H^3/J_K^2$. Pour de faibles valeurs de k_x et k_y , la relation de dispersion devient quadratique en $|\mathbf{k}|$ et correspond à l'équation 1.6 de la sous-section 1.2.2 du premier chapitre. Sur le graphique de la figure B.2, le spectre montre le gap dans la zone de Brillouin aux six endroits qui correspondent aux cônes de Dirac lorsqu'il n'y a pas de champ magnétique.

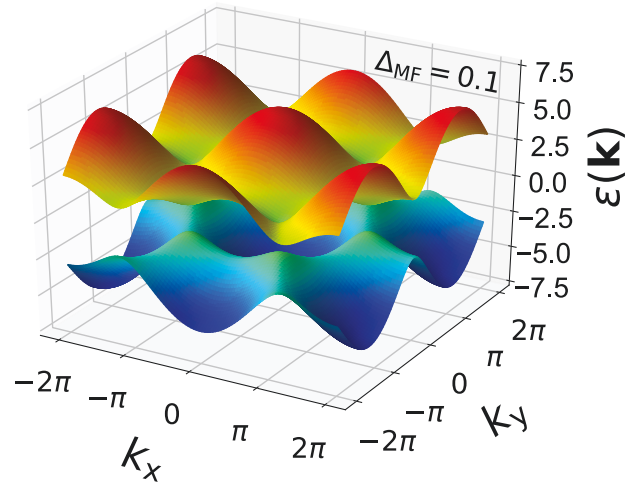


FIGURE B.2 Graphique du spectre en énergie des fermions de Majorana avec un champ magnétique externe. Un gap Δ_{MF} s'ouvre aux endroits où on retrouve les cônes de Dirac sont présents dans la première zone de Brillouin.

Annexe C

Figures supplémentaires de $\alpha - \text{RuCl}_3$

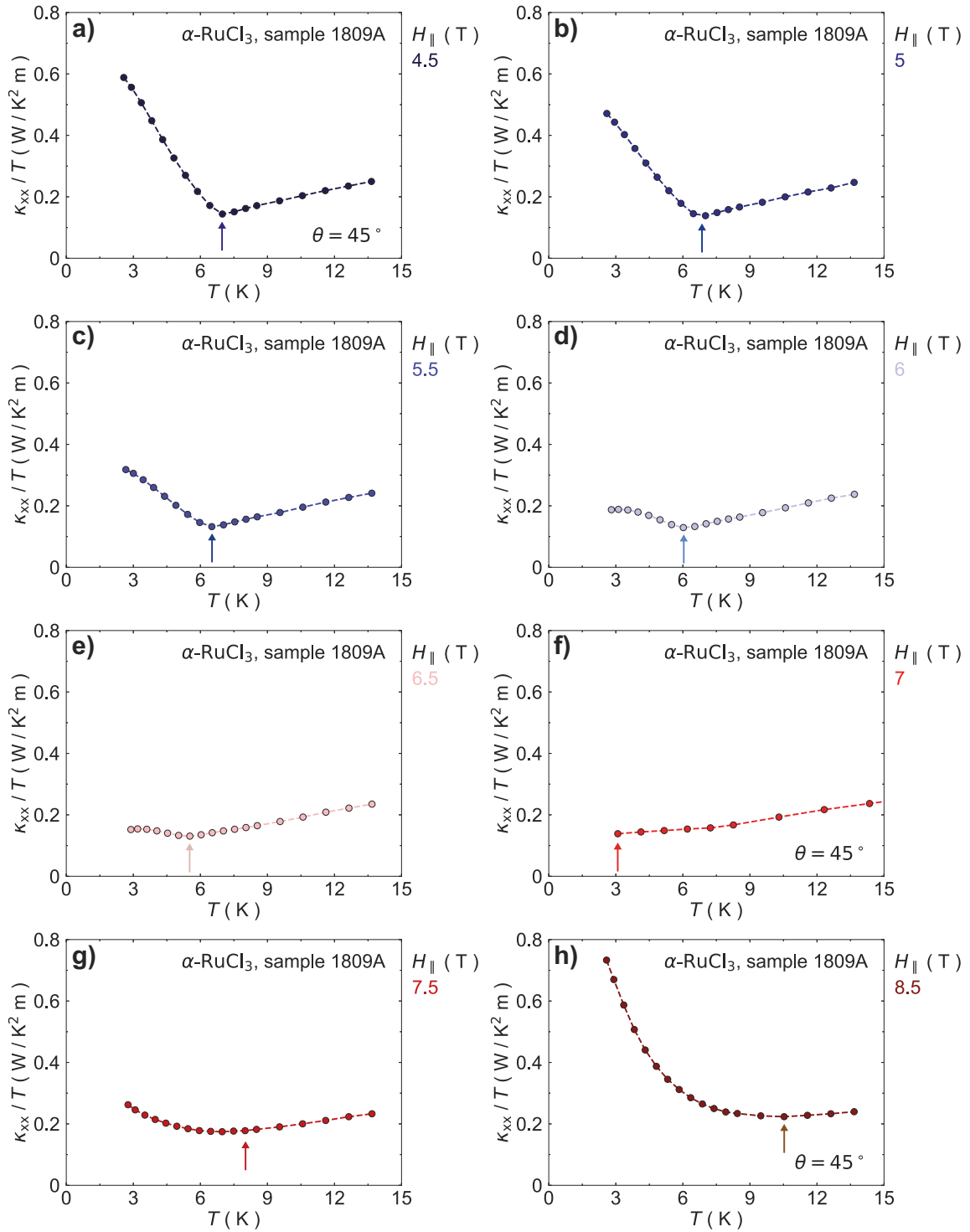


FIGURE C.1 Graphiques de κ_{xx}/T en fonction de T de l'échantillon 1809A pour un champ magnétique dans le plan $H_{||}$ de (a) 4.5T (b) 5T (c) 5.5T (d) 6T (e) 6.5T (f) 7T (g) 7.5T (h) 8.5T. Les flèches correspondent aux valeurs de température où κ_{xx}/T est minimale.

Bibliographie

- [1] Kitaev, A. *Annals of Physics* **321**(1), 2–111 January (2006).
- [2] Pachos, J. K. *Introduction to Topological Quantum Computation*. Cambridge University Press, April (2012). Google-Books-ID : XDciVh6bAE0C.
- [3] Anderson, P. W. *Materials Research Bulletin* **8**(2), 153–160 February (1973).
- [4] Binotto, L., Pollini, I., and Spinolo, G. *physica status solidi (b)* **44**(1), 245–252 (1971).
- [5] Kasahara, Y., Ohnishi, T., Mizukami, Y., Tanaka, O., Ma, S., Sugii, K., Kurita, N., Tanaka, H., Nasu, J., Motome, Y., Shibauchi, T., and Matsuda, Y. *Nature* **559**(7713), 227 July (2018).
- [6] Balents, L. *Nature* **464**, 199–208 March (2010).
- [7] Ramirez, A. P. *Annual Review of Materials Science* **24**(1), 453–480 (1994).
- [8] Savary, L. and Balents, L. *Reports on Progress in Physics* **80**(1), 016502 (2017).
- [9] Winter, S. M., Tsirlin, A. A., Daghofer, M., Brink, J. v. d., Singh, Y., Gegenwart, P., and Valentí, R. *Journal of Physics : Condensed Matter* **29**(49), 493002 November (2017).
- [10] Trebst, S. *arXiv :1701.07056 [cond-mat]* January (2017). arXiv : 1701.07056.
- [11] Sela, E., Jiang, H.-C., Gerlach, M. H., and Trebst, S. *Physical Review B* **90**(3), 035113 July (2014).
- [12] Do, S.-H., Park, S.-Y., Yoshitake, J., Nasu, J., Motome, Y., Kwon, Y. S., Adroja, D. T., Voneshen, D. J., Kim, K., Jang, T.-H., Park, J.-H., Choi, K.-Y., and Ji, S. *Nature Physics* **13**(11), 1079–1084 November (2017).
- [13] Nasu, J., Yoshitake, J., and Motome, Y. *Physical Review Letters* **119**(12), 127204 September (2017).
- [14] Plumb, K. W., Clancy, J. P., Sandilands, L. J., Shankar, V. V., Hu, Y. F., Burch, K. S., Kee, H.-Y., and Kim, Y.-J. *Physical Review B* **90**(4), 041112 July (2014).
- [15] Widmann, S., Tsurkan, V., Prishchenko, D. A., Mazurenko, V. G., Tsirlin, A. A., and Loidl, A. *Physical Review B* **99**(9), 094415 March (2019).
- [16] Cao, H. B., Banerjee, A., Yan, J.-Q., Bridges, C. A., Lumsden, M. D., Mandrus, D. G., Tennant, D. A., Chakoumakos, B. C., and Nagler, S. E. *Physical Review B* **93**(13), 134423 April (2016).

- [17] Banerjee, A., Bridges, C. A., Yan, J.-Q., Aczel, A. A., Li, L., Stone, M. B., Granroth, G. E., Lumsden, M. D., Yiu, Y., Knolle, J., Bhattacharjee, S., Kovrizhin, D. L., Moessner, R., Tennant, D. A., Mandrus, D. G., and Nagler, S. E. *Nature Materials* **15**(7), 733–740 July (2016).
- [18] Jackeli, G. and Khaliullin, G. *Physical Review Letters* **102**(1), 017205 January (2009).
- [19] Takagi, H., Takayama, T., Jackeli, G., Khaliullin, G., and Nagler, S. E. *Nature Reviews Physics* **1**(4), 264 April (2019).
- [20] Rau, J. G., Lee, E. K.-H., and Kee, H.-Y. *Physical Review Letters* **112**(7), 077204 February (2014).
- [21] Cookmeyer, J. and Moore, J. E. *Physical Review B* **98**(6), 060412 August (2018).
- [22] Rau, J. G., Lee, E. K.-H., and Kee, H.-Y. *Annual Review of Condensed Matter Physics* **7**(1), 195–221 (2016).
- [23] Singh, Y., Manni, S., Reuther, J., Berlijn, T., Thomale, R., Ku, W., Trebst, S., and Gegenwart, P. *Physical Review Letters* **108**(12), 127203 March (2012).
- [24] Williams, S., Johnson, R., Freund, F., Choi, S., Jesche, A., Kimchi, I., Manni, S., Bombardi, A., Manuel, P., Gegenwart, P., and Coldea, R. *Physical Review B* **93**(19), 195158 May (2016).
- [25] Yu, Y., Xu, Y., Ran, K., Ni, J., Huang, Y., Wang, J., Wen, J., and Li, S. *Physical Review Letters* **120**(6), 067202 February (2018).
- [26] Balz, C., Lampen-Kelley, P., Banerjee, A., Yan, J., Lu, Z., Hu, X., Yadav, S. M., Takano, Y., Liu, Y., Tennant, D. A., Lumsden, M. D., Mandrus, D., and Nagler, S. E. *Physical Review B* **100**(6), 060405 August (2019).
- [27] Johnson, R. D., Williams, S. C., Haghighirad, A. A., Singleton, J., Zapf, V., Manuel, P., Mazin, I. I., Li, Y., Jeschke, H. O., Valentí, R., and Coldea, R. *Physical Review B* **92**(23), 235119 December (2015).
- [28] Sears, J. A., Zhao, Y., Xu, Z., Lynn, J. W., and Kim, Y.-J. *Physical Review B* **95**(18), 180411 May (2017).
- [29] Zheng, J., Ran, K., Li, T., Wang, J., Wang, P., Liu, B., Liu, Z.-X., Normand, B., Wen, J., and Yu, W. *Physical Review Letters* **119**(22), 227208 December (2017).
- [30] Baek, S.-H., Do, S.-H., Choi, K.-Y., Kwon, Y., Wolter, A., Nishimoto, S., van den Brink, J., and Büchner, B. *Physical Review Letters* **119**(3), 037201 July (2017).
- [31] Wolter, A. U. B., Corredor, L. T., Janssen, L., Nenkov, K., Schönecker, S., Do, S.-H., Choi, K.-Y., Albrecht, R., Hunger, J., Doert, T., Vojta, M., and Büchner, B. *Physical Review B* **96**(4), 041405 July (2017).
- [32] Banerjee, A., Yan, J., Knolle, J., Bridges, C. A., Stone, M. B., Lumsden, M. D., Mandrus, D. G., Tennant, D. A., Moessner, R., and Nagler, S. E. *Science* **356**(6342), 1055–1059 June (2017).
- [33] Hentrich, R., Wolter, A. U., Zotos, X., Brenig, W., Nowak, D., Isaeva, A., Doert, T., Banerjee, A., Lampen-Kelley, P., Mandrus, D. G., Nagler, S. E., Sears, J., Kim, Y.-J., Büchner, B., and Hess, C. *Physical Review Letters* **120**(11), 117204 March (2018).

- [34] Hirobe, D., Sato, M., Shiomi, Y., Tanaka, H., and Saitoh, E. *Physical Review B* **95**(24), 241112 June (2017).
- [35] Janša, N., Zorko, A., Gomilšek, M., Pregelj, M., Krämer, K. W., Biner, D., Biffin, A., Rüegg, C., and Klanjšek, M. *Nature Physics* **14**(8), 786 August (2018).
- [36] Vinkler-Aviv, Y. and Rosch, A. *Physical Review X* **8**(3), 031032 August (2018).
- [37] Ye, M., Halász, G. B., Savary, L., and Balents, L. *Physical Review Letters* **121**(14), 147201 October (2018).
- [38] Hentrich, R., Roslova, M., Isaeva, A., Doert, T., Brenig, W., Büchner, B., and Hess, C. *Physical Review B* **99**(8), 085136 February (2019).
- [39] Leahy, I. A., Pocs, C. A., Siegfried, P. E., Graf, D., Do, S.-H., Choi, K.-Y., Normand, B., and Lee, M. *Physical Review Letters* **118**(18), 187203 May (2017).
- [40] Kasahara, Y., Sugii, K., Ohnishi, T., Shimozawa, M., Yamashita, M., Kurita, N., Tanaka, H., Nasu, J., Motome, Y., Shibauchi, T., and Matsuda, Y. *Physical Review Letters* **120**(21), 217205 May (2018).
- [41] Grissonnanche, G. *Une fable de phases en interaction dans les cuprates supraconducteurs contée par le transport thermique*. PhD thesis, (2016).
- [42] Grissonnanche, G., Legros, A., Badoux, S., Lefrançois, E., Zatko, V., Lizaire, M., Laliberté, F., Gourgout, A., Zhou, J.-S., Pyon, S., Takayama, T., Takagi, H., Ono, S., Doiron-Leyraud, N., and Taillefer, L. *Nature* **571**(7765), 376–380 July (2019).
- [43] Tritt, T. M. *Thermal Conductivity : Theory, Properties, and Applications*. Springer Science & Business Media, May (2005). Google-Books-ID : whJNfKmziiIC.
- [44] Berman, R., Hudson, P. R. W., and Martinez, M. *Journal of Physics C : Solid State Physics* **8**(21), L430–L434 November (1975).
- [45] Tausch, P. J. and Newrock, R. S. *Physical Review B* **16**(12), 5381–5389 December (1977).
- [46] Zhang, Y., Ong, N. P., Xu, Z. A., Krishana, K., Gagnon, R., and Taillefer, L. *Physical Review Letters* **84**(10), 2219–2222 March (2000).
- [47] Xu, Z. A., Zhang, Y., Ong, N. P., Krishana, K., Gagnon, R., and Taillefer, L. *Physica C : Superconductivity* **341-348**, 1833–1836 November (2000).
- [48] Grissonnanche, G., Laliberté, F., Dufour-Beauséjour, S., Matusiak, M., Badoux, S., Tafti, F. F., Michon, B., Riopel, A., Cyr-Choinière, O., Baglo, J. C., Ramshaw, B. J., Liang, R., Bonn, D. A., Hardy, W. N., Krämer, S., LeBoeuf, D., Graf, D., Doiron-Leyraud, N., and Taillefer, L. *Physical Review B* **93**(6), 064513 February (2016).
- [49] Katsura, H., Nagaosa, N., and Lee, P. A. *Physical Review Letters* **104**(6), 066403 February (2010).
- [50] Laurell, P. and Fiete, G. A. *Physical Review B* **98**(9), 094419 September (2018).
- [51] Mook, A., Henk, J., and Mertig, I. *Physical Review B* **99**(1), 014427 January (2019).
- [52] Chisnell, R., Helton, J., Freedman, D., Singh, D., Bewley, R., Nocera, D., and Lee, Y. *Physical Review Letters* **115**(14), 147201 September (2015).
- [53] Onose, Y., Ideue, T., Katsura, H., Shiomi, Y., Nagaosa, N., and Tokura, Y. *Science* **329**(5989), 297–299 July (2010).

- [54] Ideue, T., Onose, Y., Katsura, H., Shiomi, Y., Ishiwata, S., Nagaosa, N., and Tokura, Y. *Physical Review B* **85**(13), 134411 April (2012).
- [55] Hirschberger, M., Krizan, J. W., Cava, R. J., and Ong, N. P. *Science* **348**(6230), 106–109 April (2015).
- [56] Hirschberger, M., Chisnell, R., Lee, Y. S., and Ong, N. *Physical Review Letters* **115**(10), 106603 September (2015).
- [57] Watanabe, D., Sugii, K., Shimozawa, M., Suzuki, Y., Yajima, T., Ishikawa, H., Hiroi, Z., Shibauchi, T., Matsuda, Y., and Yamashita, M. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 201524076 July (2016).
- [58] Doki, H., Akazawa, M., Lee, H.-Y., Han, J. H., Sugii, K., Shimozawa, M., Kawashima, N., Oda, M., Yoshida, H., and Yamashita, M. *Physical Review Letters* **121**(9), 097203 August (2018).
- [59] Ideue, T., Kurumaji, T., Ishiwata, S., and Tokura, Y. *Nature Materials* **16**(8), 797–802 August (2017).
- [60] Binnewies, M., Glaum, R., Schmidt, M., and Schmidt, P. *Chemical Vapor Transport Reactions*. Walter de Gruyter, August (2012). Google-Books-ID : GgG3Ewn_M9MC.
- [61] Sears, J. A., Songvilay, M., Plumb, K. W., Clancy, J. P., Qiu, Y., Zhao, Y., Parshall, D., and Kim, Y.-J. *Physical Review B* **91**(14), 144420 April (2015).
- [62] Kubota, Y., Tanaka, H., Ono, T., Narumi, Y., and Kindo, K. *Physical Review B* **91**(9), 094422 March (2015).
- [63] Sandilands, L. J., Tian, Y., Plumb, K. W., Kim, Y.-J., and Burch, K. S. *Physical Review Letters* **114**(14), 147201 April (2015).
- [64] Nasu, J., Knolle, J., Kovrizhin, D. L., Motome, Y., and Moessner, R. *Nature Physics* **12**(10), 912–915 October (2016).
- [65] Banerjee, A., Lampen-Kelley, P., Knolle, J., Balz, C., Aczel, A. A., Winn, B., Liu, Y., Pajewski, D., Yan, J., Bridges, C. A., Savici, A. T., Chakoumakos, B. C., Lumsden, M. D., Tennant, D. A., Moessner, R., Mandrus, D. G., and Nagler, S. E. *npj Quantum Materials* **3**(1), 8 February (2018).
- [66] Lampen-Kelley, P., Janssen, L., Andrade, E. C., Rachel, S., Yan, J.-Q., Balz, C., Mandrus, D. G., Nagler, S. E., and Vojta, M. *arXiv :1807.06192 [cond-mat]* July (2018). arXiv : 1807.06192.